

N° d'ordre : 164

THÈSE

présentée

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

pour obtenir

LE DIPLOME DE DOCTEUR DE SPÉCIALITÉ (3^e CYCLE)

DE PHYSIQUE (PHYSIQUE DU SOLIDE)

PAR

Edmond VICARIO

Licencié ès Sciences

Contribution à l'étude des couches minces d'antimoniure de césium

Soutenue le 20 Janvier 1966, devant la Commission d'Examen.

MM. G. MESNARD	Président
R. UZAN	} Examineurs
R. SCHMITT	
R. RICARD	

LYON

Imprimerie BOSC Frères
42, quai Gailleton, 42

1966

N° d'ordre : 164

THÈSE

présentée

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

pour obtenir

LE DIPLOME DE DOCTEUR DE SPÉCIALITÉ (3^e CYCLE)

DE PHYSIQUE (PHYSIQUE DU SOLIDE)

PAR

Edmond VICARIO

Licencié ès Sciences

Contribution à l'étude des couches minces d'antimoniure de césium

Soutenue le 20 Janvier 1966, devant la Commission d'Examen.

MM. G. MESNARD	Président
R. UZAN	} Examineurs
R. SCHMITT	
R. RICARD	

LYON

Imprimerie BOSC Frères
42, quai Gailleton, 42

—
1966



UNIVERSITE DE LYON
FACULTE DES SCIENCES

Doyens honoraires

MM. LONGCHAMBON, MOUSSA, GAUTHIER Henri.

Professeurs honoraires

MM. de LARAMBERGUE, SOLLAUD, MENTZER, MOUSSA, JAFFARD,
EYRAUD Henri, DEJARDIN, VIRET.

Doyen

M. BRACONNIER

Assesseurs

MM. MESNARD
BOIDIN

Professeurs

MM. LONGCHAMBON	Minéralogie
PRETTRE	Chimie industrielle
COURTY	Chimie-Physique
KUHNER	Botanique
MALECOT	Mécanique rationnelle et appliquée
PARIS	Chimie minérale
AUMERAS	Chimie générale II
COLONGE	Chimie organique
JANIN	Physique générale
FLANDRIN	Géologie appliquée
BERNARD	Physique industrielle
DUFAY Jean	Astronomie
NIGON	Zoologie expérimentale
GAUTHIER Henri	Géologie générale
WAUTIER	Zoologie
CHOPIN	Chimie biologique
CUEILLERON	Chimie
BRACONNIER	Calcul différentiel et intégral
EYRAUD Charles	Chimie-Physique appliquée
SARAZIN	Physique nucléaire
BOIDIN	Microbiologie et Mycologie
PERES	Physiologie
MESNARD	Electronique
GRANDMONTAGNE	Physique
BOUTILLIER	Minéralogie
LAFOUCRIERE	Physique nucléaire théorique

MM. SCHMITT	Physique C.P.E.M.
LAURENT	Chimie organique
ROT	Mathématiques
BETHOUX	Mathématiques T.M.P.
Mle CALAIS	Mathématiques
GUSAKOW	Physique
Mle THOMAS	Chimie minérale
COLOBERT	Physiologie
AUBIN	Analyse numérique
BUCHWALTER	Mathématiques
BOUZON	Mathématiques C.S.U.
COSNIER	Psychophysiologie
Mle LAMOURE	Biologie végétale
PORHAULT	Chimie C.S.U.
VALLET	Chimie macromoléculaire

Maître de Conférences adjoint

M. PIERRON Chimie

Conseiller administratif

M. BURNET

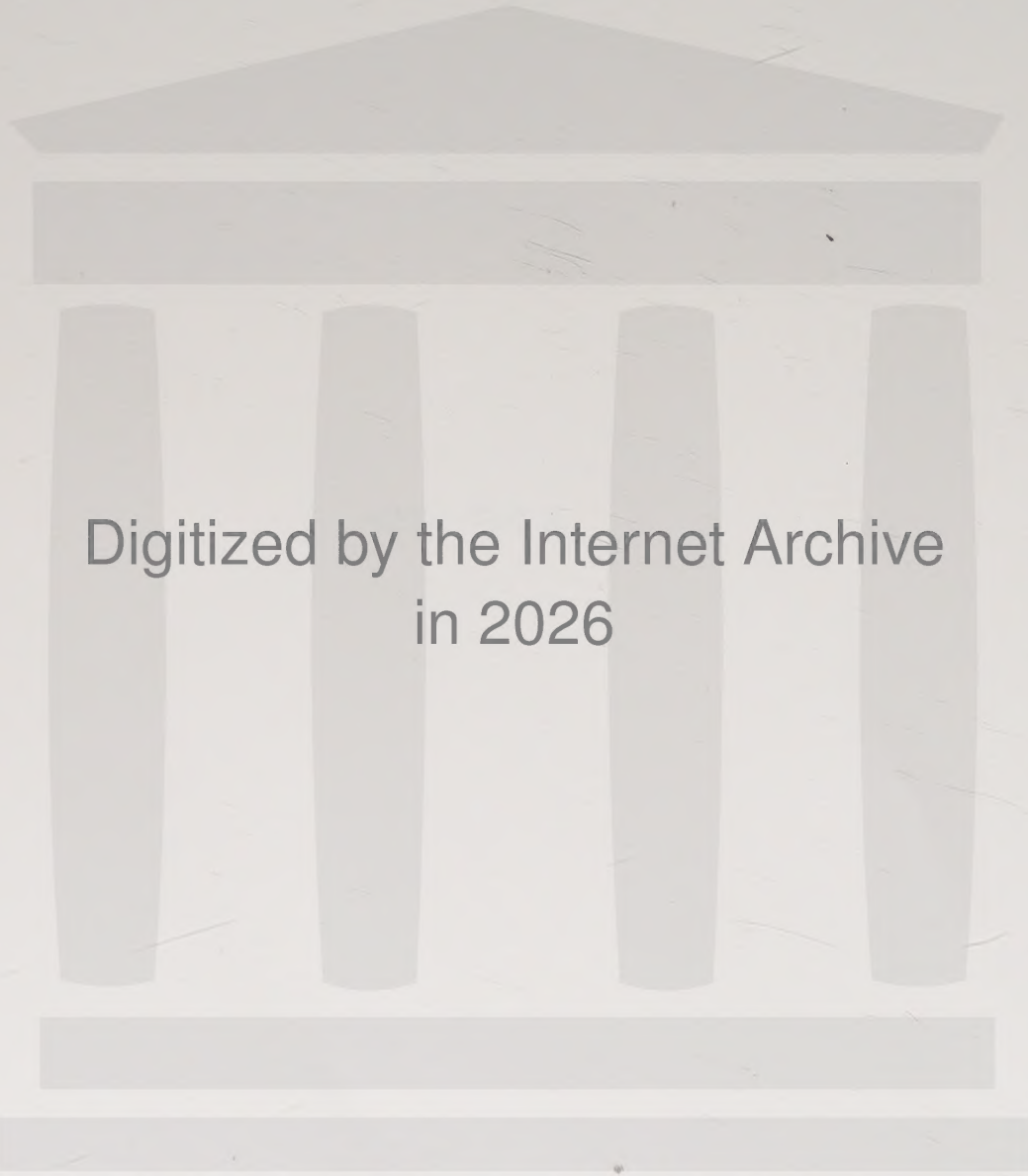
Secrétaire Principal honoraire

M. ROUX

A MA FAMILLE

A MES AMIS

A MES MAITRES



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41553409_0008

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Laboratoire d'Emission Electronique de la Faculté des Sciences de Lyon.

Monsieur le Professeur G. MESNARD a bien voulu s'intéresser à cette étude et assurer la présidence de notre jury; nous lui adressons nos respectueux remerciements.

Nous sommes particulièrement heureux de pouvoir rendre hommage à Monsieur le Professeur R. UZAN, Directeur du Laboratoire d'Emission Electronique, qui a dirigé notre étude; nous lui sommes très reconnaissant de l'intérêt constant qu'il a eu pour nos recherches et du soutien qu'il nous a apporté par ses conseils.

Monsieur le Professeur R. SCHMITT a suivi nos travaux avec beaucoup d'attention, tout particulièrement notre étude sur l'utilisation des traceurs radioactifs; nous lui exprimons notre profonde gratitude ainsi qu'à Monsieur le Professeur CUER, qui a bien voulu nous permettre d'effectuer quelques mesures dans son Laboratoire de Physique Corpusculaire de Strasbourg.

Monsieur R. RICARD, Doyen de la Faculté Catholique des Sciences de Lyon, a accepté de faire partie du jury; qu'il veuille bien trouver ici l'expression de nos respectueux remerciements.

Nous voulons remercier aussi Monsieur le Professeur J. TOUSSET et son collaborateur L. VIDAL de l'aide qu'il nous ont apportée dans le domaine de la Chimie Nucléaire.

Et nous ne saurions oublier nos camarades de Laboratoire Assistants et Techniciens, dont la collaboration nous a été fort agréable et plus spécialement Mademoiselle FIANCETTE, Madame CASTET, Messieurs LAYET et RAYNAUD, Mademoiselle LARONER.

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES COUCHES MINCES

D'ANTIMONIURE DE CESIUM

INTRODUCTION

Bien que de très nombreux travaux aient été effectués depuis la mise en évidence par Görlich [1] d'un rendement quantique élevé des couches minces photoémissives d'antimoniure de césium, la réalisation de telles couches est restée artisanale; le grand nombre de paramètres susceptibles de modifier les couches et le caractère trop technique de nombreuses recherches en sont probablement la cause.

Nous avons essayé, non pas d'améliorer une technique de fabrication, mais d'apporter quelques renseignements sur le comportement de telles couches complexes. Il nous a paru nécessaire de préciser d'abord les propriétés de la couche mince d'antimoine et d'en déterminer l'épaisseur. Nous avons étudié ensuite la photoémission de couches minces semi-transparentes d'antimoniure de césium Cs_3Sb en fonction de leur épaisseur et leur résistivité en fonction de la température. Nous avons enfin déterminé la quantité de césium présente et suivi son évolution au cours de différents traitements, en utilisant la méthode des traceurs radioactifs.

CHAPITRE PREMIER

ETUDE DES COUCHES MINCES D'ANTIFONE

I - APPAREILLAGE D'EVAPORATION ET DE MESURE

- 1) Dispositif de pompage
- 2) Les évaporateurs
- 3) Disque de Talbot
- 4) Porte-échantillon
- 5) Détermination de l'épaisseur massique par quartz piézoélectrique
- 6) Appareillage optique
- 7) Sondes de mesures électriques

II - RESULTATS EXPERIMENTAUX

- 1) Evaporation sous incidence normale
- 2) Evaporation sous incidence élevée
- 3) Phénomènes de cristallisation

III - DETERMINATION DES EPAISSEURS REELLES

CONCLUSION

Pour déterminer la quantité d'antimoine déposée en couche mince sur un substrat transparent, il est commode d'en mesurer la transparence optique; un étalonnage préalable est alors nécessaire. Dans l'enceinte même de préparation maintenue sous vide l'épaisseur des couches a été déterminée et leurs propriétés optiques et électriques étudiées.

I - APPAREILLAGE D'EVAPORATION ET DE MESURE

L'équipement comprend : un dispositif de pompage rapide, un ensemble d'évaporateurs (permettant en particulier d'opérer sous diverses incidences), un disque tournant destiné à la production simultanée de films d'épaisseurs différentes, un porte-échantillon mobile et étuvable, un montage de détermination de l'épaisseur massique par quartz piézoélectrique, un dispositif de mesure de la transparence optique, des sondes de mesures électriques.

1) Dispositif de pompage

C'est une adaptation d'une installation classique de coulée sous vide Edwards (E 192) munie d'une pompe à diffusion d'huile de 300 l/s à 10^{-6} torr. Les accessoires de fusion et de coulée ont été enlevés et l'espace utile a été doublé par l'utilisation d'une cloche de verre, tandis que l'adjonction d'un piège à azote liquide permettait d'améliorer le vide limite tout en éliminant les traces d'hydrocarbures provenant du fluide utilisé. Un vide de quelques 10^{-6} torr est atteint dans un volume de 50 dm³ environ au bout d'une demi-heure de fonctionnement.

Disposant d'un passage mécanique lent mais à couple élevé, nous lui avons adapté un système de roues dentées, destiné à produire les mouvements nécessaires à l'intérieur de l'enceinte, entraîné par un ensemble moteur-réducteur exté-

rieur tournant à 30 t/mn. Un certain nombre de passages étanches de conducteurs isolés ont été prévus : deux passages pour haute intensité (jusqu'à 100 A) servent à alimenter les évaporateurs; des passages divers sont utilisés pour les liaisons électriques avec les sondes, l'alimentation de la source lumineuse, le fonctionnement de la cellule photoélectrique, la mesure de la température par thermocouple BTE-ATE, l'étuvage par résistance chauffante; enfin un passage H.F. est relié au quartz piézoélectrique.

2) Les évaporateurs

Le mode d'évaporation le plus usuel est l'évaporation sous incidence normale; nous avons utilisé pour l'antimoine une nacelle de molybdène chauffée par effet Joule et tapissée intérieurement d'une feuille de tantale de 0,1 mm d'épaisseur. Cette technique permet de régler facilement la vitesse d'évaporation; ce réglage est nécessaire pour assurer la reproductibilité des couches [I, 1] .

Un deuxième type d'évaporateur comporte un anneau de nickel de rayon intérieur $R = 1,9$ cm, de largeur $R/5$, placé à la distance $h = 1,3 R$ de la lame-support. Ce procédé d'évaporation sous des angles d'incidence élevés, préconisé par G.A. Condas [I, 2] pour l'antimoine nous a permis d'obtenir des couches très uniformes.

Un évaporateur spécial est en outre installé en vue des mesures ultérieures d'épaisseur à l'aide de franges de coin d'air (méthode classique de Tolansky [I, 3]); il convient en effet de recouvrir la couche d'un film à pouvoir réflecteur élevé. L'évaporateur est réalisé avec des fils de tungstène tressés sur lesquels sont disposés des cavaliers d'aluminium (à 99,9 % de pureté). Ce film protège en outre la couche lorsqu'elle est sortie de l'enceinte pour l'observation des franges.

Tous nos éléments chauffants ont subi, avant l'emploi, un traitement thermique sous vide à une température nettement supérieure à celle qui interviendra dans leur utilisation.

3) Disque de Talbot

Pour obtenir simultanément sur une lame-support des dépôts d'épaisseurs différentes, nous utilisons un "disque de Talbot" tournant à environ 1 mm de la lame; ainsi les effets de pénombre sont négligeables et les cinq zones obtenues ont des bords nets. Ce disque permet de déposer des couches dont les épaisseurs massiques sont en progression arithmétique. Il a 10 cm de rayon et doit tourner à une vitesse supérieure à 300 t/mn; il faut donc multiplier au moins par 10 la vitesse de rotation de notre passage tournant. Ceci est obtenu grâce à une double transmission faisant intervenir deux roues dentées reliées par une chaîne et quatre poulies entraînées par un ressort à boudin. Le montage transforme en outre la rotation d'axe horizontal en une rotation d'axe vertical. Nous obtenons ainsi une vitesse de 360 t/mn.

4) Porte-échantillon

La lame sur laquelle l'évaporation a lieu est un porte-objet de microscope (2,6 x 7,5 cm) dont une partie, complètement cachée par le centre du disque servira de référence pour les mesures de transparence optique. Pour celles-ci, il fallait prévoir un déplacement latéral de la lame avec une position reproductible. Elle est donc portée par un chariot en acier inoxydable, mobile sur deux glissières avec entraînement par un système de pignons et de chaînes qui commande le mouvement du chariot. Une graduation placée le long de la crémaillère permet de mesurer les déplacements. Dans certains cas la lame de verre a été remplacée par une feuille de mica de mêmes dimensions.

Pour obtenir une couche mince uniforme sur une telle

surface, il faut se placer loin de l'évaporateur lorsqu'on emploie une nacelle. Nous avons choisi une distance de 25 cm.

Autour du porte-échantillon est placé un four à résistance, constitué par un ruban chauffant et des écrans permettant de faire les dépôts sur un support porté à une température réglable ou de traiter les couches déposées. Il est muni d'un thermocouple; on peut le stabiliser et décrire automatiquement des programmes de traitement.

Le porte-échantillon est en outre muni d'un accessoire qui permettra ensuite la mesure de l'épaisseur vraie de la couche; une pointe mobile trace une fine rainure sur le dépôt de façon à mettre à nu le support. Le revêtement d'aluminium déposé sur la couche présentera un sillon dont la profondeur, égale à l'épaisseur cherchée, sera déterminée par interférométrie à ondes multiples, à l'aide d'une lame auxiliaire, semi-argentée, formant coin d'air avec la lame expérimentale.

5) Détermination de l'épaisseur massique par quartz piézoélectrique

La mesure sous vide de la masse déposée par unité de surface, au fur et à mesure de l'évaporation, est effectuée à l'aide d'un quartz piézoélectrique placé dans le même plan que la lame-support et dans son voisinage immédiat. La méthode consiste à mesurer la variation de fréquence du quartz lorsqu'il est surchargé sur l'une de ses faces par le dépôt. La théorie classique de ce phénomène [1, 4] conduit à la formule $\Delta f/f = m/M$, dans laquelle f désigne la fréquence d'oscillations, M la masse de la lame de quartz et m la masse de la surcharge. Nous avons vérifié que cette relation n'est valable que si l'on couvre entièrement l'une des faces du cristal.

Cette façon d'opérer exige de démonter et de remonter le quartz dans le boîtier porte-électrodes, ce qui peut mo-

difier la fréquence d'oscillation, indépendamment de toute surcharge. Pour cette raison et afin d'effectuer des mesures continues en cours d'évaporation on doit laisser le cristal dans son boîtier, un trou central étant percé dans l'armature inférieure. La relation précédente ne s'applique plus. G. Sauerbrey [1, 5] a tracé la courbe de sensibilité du quartz en fonction de la position d'une surcharge ponctuelle (Figure I, 1). Cette courbe, obtenue avec des cristaux circulaires, est valable pour des cristaux carrés.

Pour nos quartz rectangulaires, nous avons adopté un trou de 3 mm de diamètre, ce qui donne une sensibilité suffisante. On a alors $\Delta f/f = Km/M$. Le coefficient K dépend uniquement des dimensions du trou et de sa position par rapport au cristal. Il a été déterminé en déposant simultanément une couche de cuivre sur le quartz, sur des lames de mica finement clivées et sur des couvre-objets de microscope. La masse de métal ainsi déposée a été mesurée à l'aide d'une balance sensible au microgramme et un contrôle par colorimétrie a été effectué. La linéarité de la relation précédente a été vérifiée jusqu'à plusieurs centaines de microgrammes par centimètre carré. Nous en avons déduit la valeur $K = 0,40$.

La mesure de la variation de fréquence est effectuée par une méthode de battements en comparant deux quartz identiques oscillant autour de 6 Mc dont l'un seulement reçoit la masse m. Le montage électronique transistorisé comprend essentiellement deux oscillateurs, deux étages séparateurs, un mélangeur et un amplificateur (Figure I, 2). La fréquence du signal obtenu est comparée à celle qui provient d'un générateur B.F., par examen des courbes de Lissajous sur l'écran d'un oscilloscope.

6) Appareillage optique

Il est destiné à la mesure de l'absorption. Celle-ci

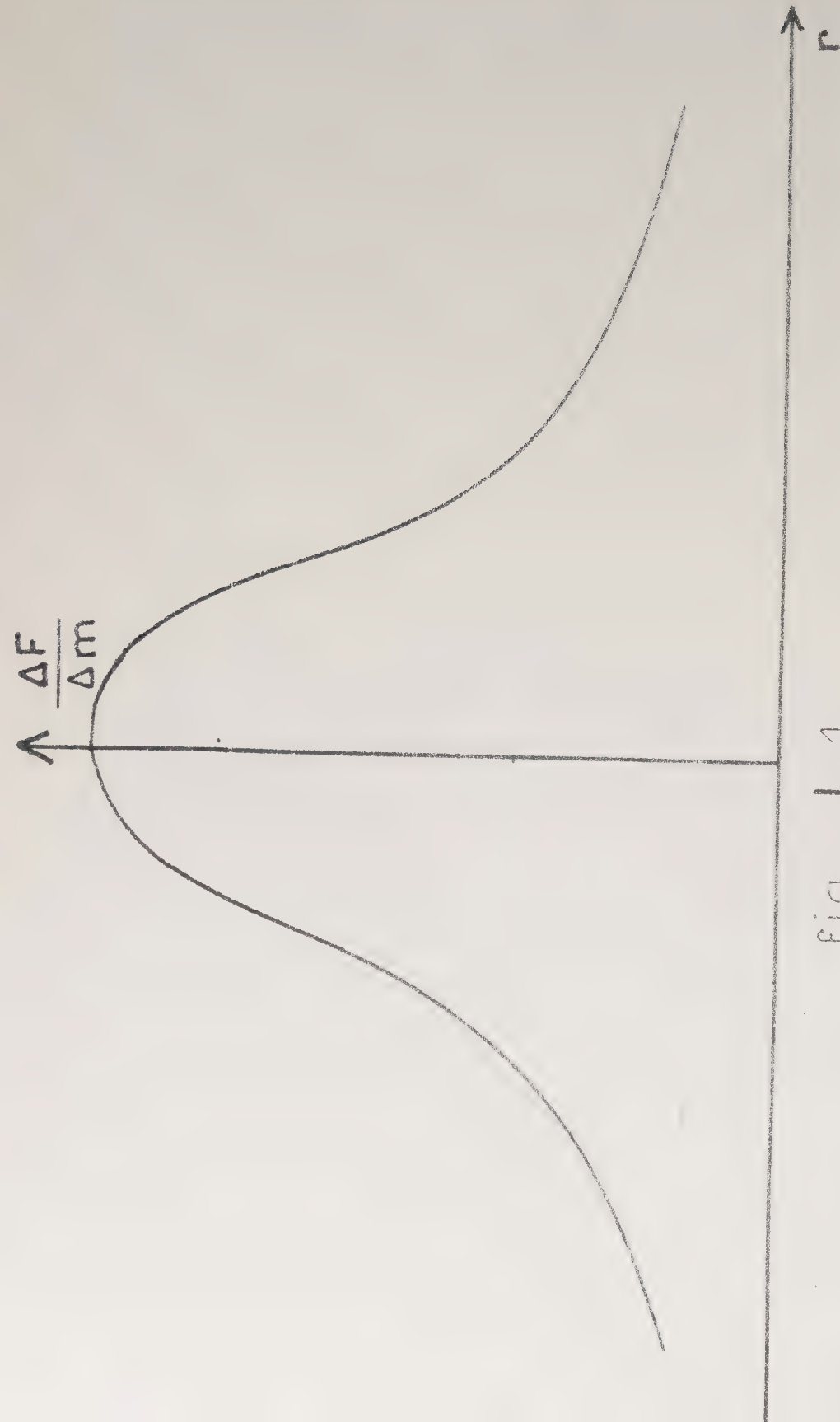


Fig 1-1 -

Sensibilité d'un quartz piézoélectrique
en fonction de la position de la
surcharge (d'après Sauerbrey)

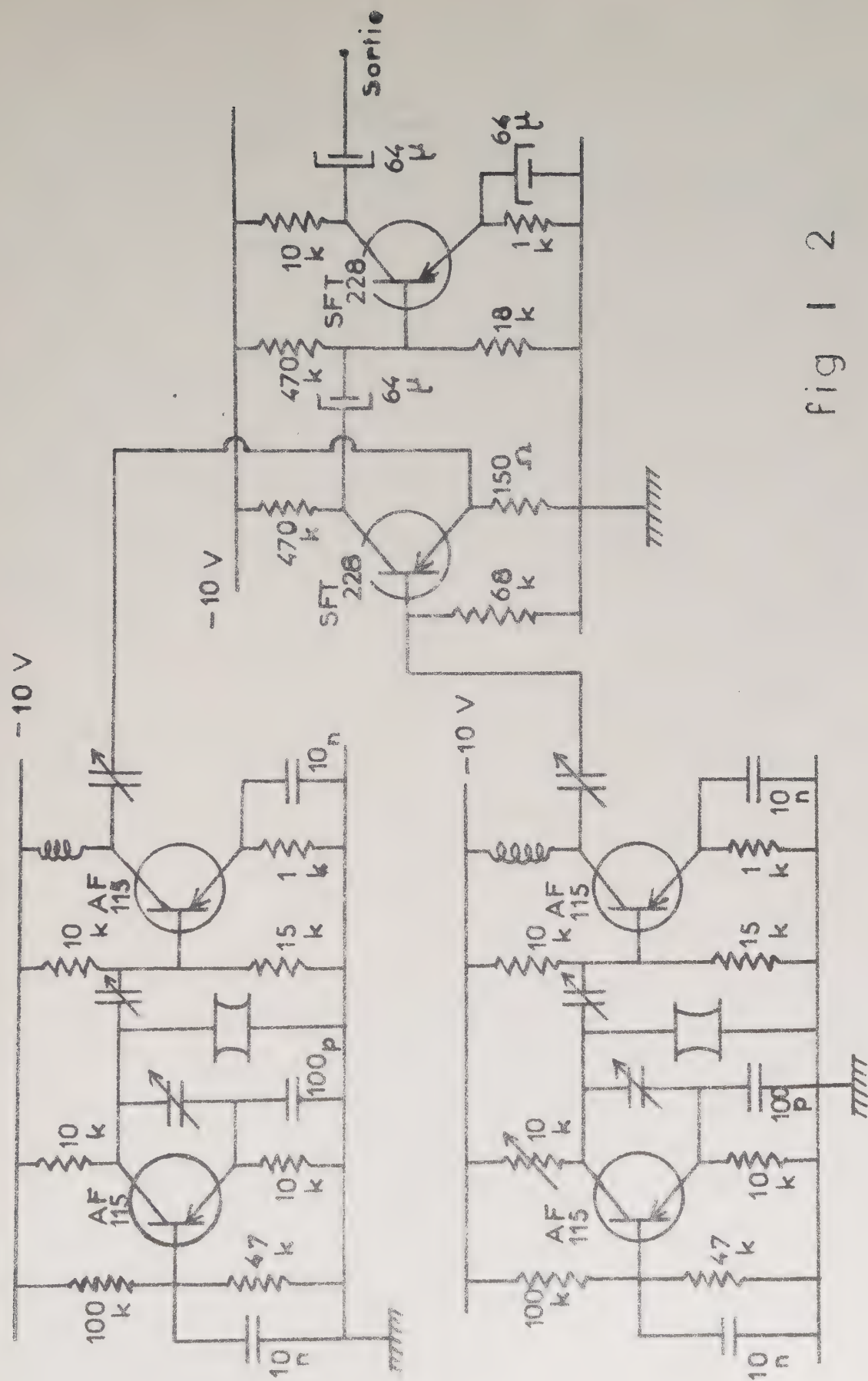


Fig 1 2

est fonction de la longueur d'onde mais sa variation est assez lente; il n'est donc pas indispensable d'utiliser une lumière rigoureusement monochromatique. Nous avons opéré avec des filtres dont nous avons déterminé la réponse spectrale en particulier les résultats qui suivront correspondent à une longueur d'onde voisine de $5850 \text{ \AA}$ (filtre orangé).

Le disque de Talbot produisant des zones de 1 cm de largeur, il est nécessaire pour la mesure de la transparence de n'éclairer qu'une plage étroite et bien déterminée. On focalise sur la lame avec un faisceau de faible ouverture. Le faisceau transmis est recueilli par une "cellule de mesure" au césium sur argent oxydé (La Radiotechnique, type 150 CV). L'intensité du courant de cellule est lue sur un galvanomètre (A.O.I.P., type 6 206). La source lumineuse est alimentée par une batterie; un rhéostat permet de faire varier l'intensité.

7) Sondes de mesures électriques

Les contacts électriques avec la couche mince nécessaires à ces mesures, ont été réalisés en platinant certaines plages de la lame de verre support sur lesquelles sont soudées les arrivées de courant et les sondes de potentiel.

II - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les mesures de conductivité électrique et de transparence optique en fonction de l'épaisseur ont été effectuées sur des dépôts obtenus par les deux techniques précédemment indiquées. Désignons par ϕ_0 le flux lumineux incident, par ϕ_1 le flux transmis à travers une lame de verre non encore recouverte d'antimoine et par ϕ_2 celui qui est transmis lorsque la couche mince d'antimoine d'épaisseur z a été déposée. On a :

$$\phi_2 = \alpha \phi_1 \exp (- 4 \pi k z / \lambda)$$

Le coefficient $\bar{\alpha}$ tient compte des réflexions verre-métal et métal-vidé, k désigne l'indice d'extinction du revêtement et λ la longueur d'onde utilisée. Nous désignerons par $O_1 = \phi_0/\phi_1$ l'opacité de la lame support et par $O_2 = \phi_0/\phi_2$ l'opacité totale. La densité optique de la couche sera définie par : $D = \log O_2/O_1 = \log \phi_1/\phi_2$

$$D = \frac{4\pi k z}{\lambda} \log e + \text{colog } \alpha$$

Les intensités I_1 et I_2 des courants photoélectriques étant proportionnelles aux flux lumineux ϕ_1 et ϕ_2 , on a

$$D = \log I_1/I_2$$

1) Evaporation sous incidence normale

La courbe d'absorption dépend de la vitesse d'évaporation. Nous avons retrouvé expérimentalement les résultats de Cremer & Ruedl [1, 1] en faisant varier ce paramètre. Pour une vitesse suffisamment faible (moins de $1 \mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{mn}$ au niveau de la lame support) la courbe est reproductible; nous l'avons représentée sur la figure I, 3. Elle présente une cassure nette vers $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, pour un dépôt sur verre; les deux parties vérifient bien la loi exponentielle, à l'exception des très faibles épaisseurs pour lesquelles le taux de réflexion n'est pas constant.

La valeur de k est d'environ 2,4 pour des épaisseurs inférieures à $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$; elle est plus faible que la valeur 4,94 indiquée pour le métal massif par Drude. On en déduit que la couche n'est pas régulière, mais criblée de trous, les atomes de métal jaillissant de la source par paquets. En raison de la faible dispersion des points expérimentaux (une centaine), les défauts sont statistiquement reproductibles.

La deuxième partie de la courbe doit correspondre à une structure différente. Un examen aux rayons X effectué sur des films même plus minces mais déposés plus rapidement,



Fig 1 - 5 -

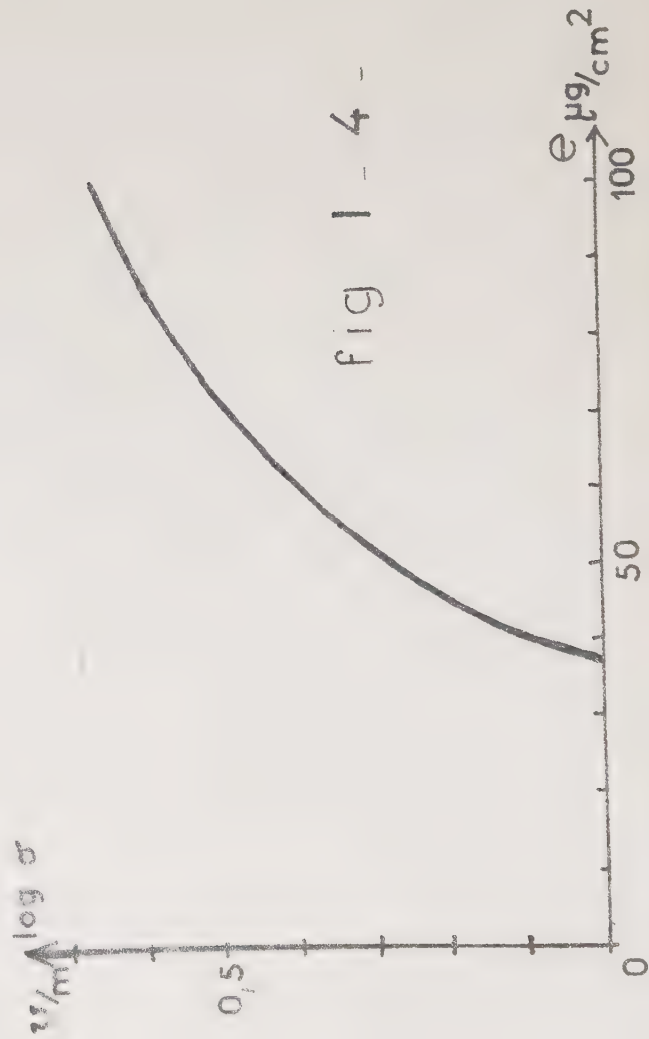
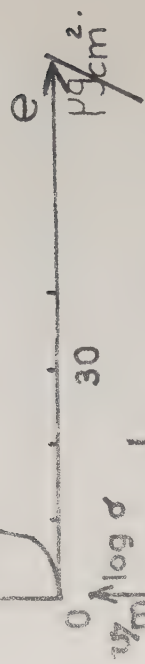


Fig 1 - 4 -

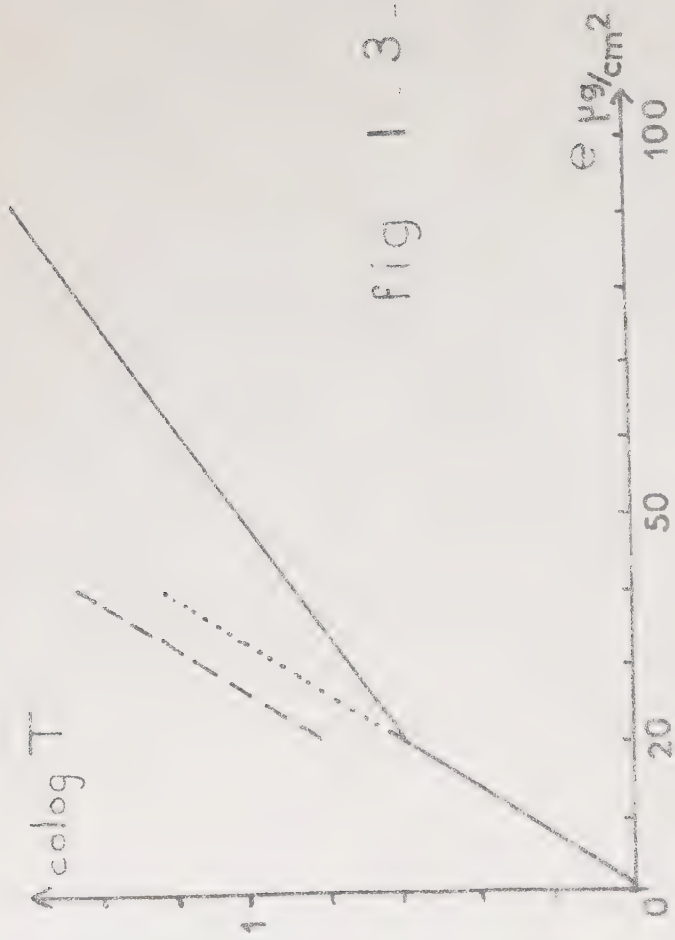


Fig 1 - 3 -

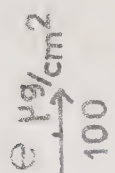
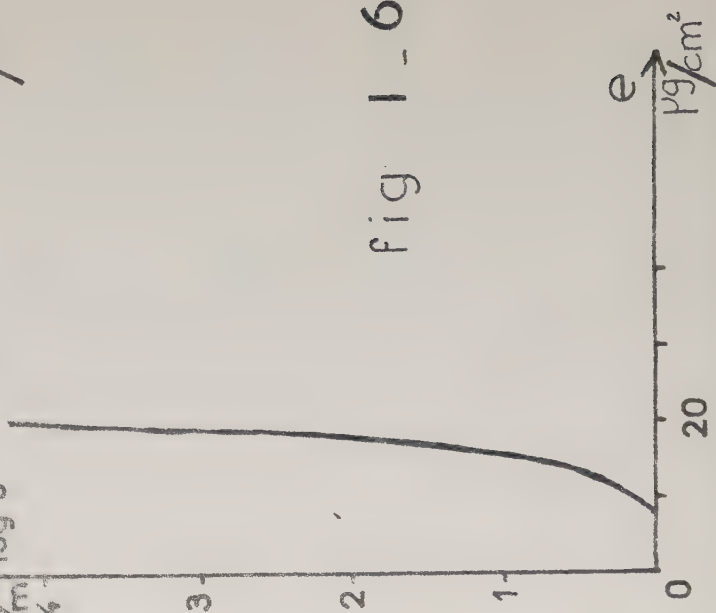


Fig 1 - 6 -



montre que le dépôt est alors cristallin. Bien que la cristallinité ne puisse être mise en évidence pour les couches correspondant à la figure I, 3, on doit admettre qu'il y a un début d'arrangement cristallin. Cette interprétation semble être confirmée par des évaporations faites sur un support de mica. La formation de cristallites doit être favorisée par la cristallinité du substrat. Le point anguleux est effectivement obtenu vers $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$; la première partie de la courbe reste inchangée, la seconde étant décalée vers le bas.

Nous avons étudié l'influence de traitements thermiques des couches à des températures de l'ordre de $100-120^\circ \text{C}$ pendant environ 1 mn. Il n'y a pas de modification sensible pour les faibles épaisseurs; par contre, au-dessus de $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, les traitements provoquent une diminution de la transparence; les points expérimentaux obtenus alors sont sensiblement dans le prolongement de la première partie de la courbe (tracé en pointillés sur la figure I, 3).

Ce comportement s'explique par l'évolution de la structure provoquée par les traitements. De nombreux auteurs l'ont étudiée et ont même signalé diverses transformations structurales d'origine mécanique et thermique pour des températures comprises entre 75 et 150°C (voir par exemple [I, 6, 7]). L'arrangement serait perturbé et on retrouverait l'état amorphe des couches minces.

Les films conservés sous la pression de quelques 10^{-6} torr deviennent progressivement moins transparents (par exemple trait discontinu de la figure I, 3) pour la longueur d'onde utilisée ($5\,850 \text{ \AA}$); un traitement thermique ramène la transparence à la valeur primitive (courbe pointillée).

On a effectué des mesures de conductivité sur des couches initiales non traitées (Figure I, 4). La conductivité augmente avec l'épaisseur mais reste toutefois très inférieure à la valeur massique. Ceci résulte évidemment de la

structure très lacunaire, indépendamment des effets de surface que présente l'antimoine. Divers travaux ont été publiés à ce sujet (voir par exemple de [I, 8 à 10]). Les traitements thermiques provoquent une importante augmentation de la conductivité (par exemple dans le rapport 10).

2) Evaporation sous incidence élevée

L'évaporateur est un anneau de nickel préalablement recouvert d'antimoine par évaporation sous vide et chauffé par effet Joule. La figure I, 5 donne la courbe de transparence des dépôts obtenus. Le coefficient d'extinction apparent k est ici très élevé; il est voisin de 7,1 c'est-à-dire nettement plus grand que pour le métal massif : les couches sont beaucoup plus compactes que les précédentes et d'autre part elles sont amorphes, ce qui conduit à une absorption plus grande que dans l'état cristallin. Nos résultats se rapprochent de ceux de Rome [I, 11] et de Condas [I, 2].

De très faibles valeurs de la transparence sont observées pour les couches les plus minces. Cette anomalie disparaît à la suite d'un traitement thermique qui provoque une augmentation considérable de l'opacité, une augmentation moins importante étant obtenue pour des couches plus épaisses. On peut admettre que les dépôts très minces sont relativement moins réguliers, de sorte que le traitement, qui provoque un nivellement, doit avoir un effet plus important (dans le cas d'une structure lacunaire le nivellement n'était pas possible). Avant traitement le taux d'irrégularité diminue quand l'épaisseur augmente de sorte que la courbe, bien qu'en majeure partie sensiblement rectiligne, s'écarte d'une courbe de transparence théorique; il faut tenir compte aussi des variations du pouvoir réflecteur. La courbe pointillée obtenue après chauffage a un aspect plus classique.

On a constaté que la transparence dépend de l'état de

surface du support, mais les couches sont toujours amorphes à cause de la lenteur de l'évaporation.

La conductivité électrique (Fig. I, 6) est beaucoup plus élevée qu'avec les dépôts précédents et augmente très rapidement avec l'épaisseur; avec $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ elle est seulement mille fois plus faible que celle du métal massif. Ce résultat confirme que les films sont beaucoup plus uniformes que les précédents.

Les traitements thermiques provoquent encore une augmentation de la conductibilité, mais seulement dans le rapport 2 ou 3, en accord avec la variation du taux d'irrégularité.

3) Phénomènes de cristallisation

Quelle que soit la méthode d'évaporation, mais plus facilement avec la première, des germes cristallins apparaissent dans les dépôts pour des épaisseurs suffisamment grandes ou des vitesses d'évaporation élevées; ils produisent des taches bleutées sur le fond amorphe de couleur brune. La cristallisation devient alors finalement complète. On a obtenu des couches cristallisées de $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ en évaporant rapidement. Ce résultat est en accord avec celui de Condas, ce qui laisse supposer qu'il employait des vitesses d'évaporation assez élevées. Nous avons vu qu'en procédant lentement on pouvait préparer des couches amorphes de $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. La méthode du disque de Talbot nous a permis d'obtenir des films cristallisés dans les zones les plus épaisses, et amorphes dans d'autres, avec une ligne de transition dentelée qui n'est pas nécessairement à la limite d'une zone; ceci montre que la présence des germes favorise la cristallisation.

Pour une même épaisseur l'antimoine cristallisé est plus transparent que l'antimoine amorphe, l'opacité augmentant avec la longueur d'onde dans le premier cas et diminuant dans le second.

Nos films d'antimoine cristallisés ont été étudiés aux rayons X. Nous avons vérifié qu'à la température ambiante l'antimoine appartient au système hexagonal. Nous avons vu, en outre, à l'aide de la méthode de Lambot-Vassamillet, que les domaines cristallins, dont les axes sont sensiblement perpendiculaires au plan de la lame-support, présentent de faibles désorientations, ce qui est certainement lié aux inégalités de surface de la lame.

III - DETERMINATION DES EPAISSEURS REELLES

Une méthode interférométrique utilisant des franges de coin d'air ou des anneaux de Newton a été adoptée. Une pointe en acier permet de tracer un sillon dans la couche d'antimoine mettant à nu le verre sous jacent. Un revêtement d'aluminium très réfléchissant est ensuite évaporé. Entre la lame miroir ainsi préparée et une lame semi-transparente, on réalise un coin d'air et on observera au microscope les franges d'égale épaisseur. La source de lumière utilisée est une lampe à vapeur de mercure dont on isole la raie verte ($5461 \text{ \AA}$) grâce à un filtre de Wratten. Si la lame semi-transparente est plane, on observe des segments de droites parallèles à l'arête du dièdre formé.

Soit d_1 un chemin optique entre les deux surfaces réfléchissantes (Fig. I, 7). Un minimum d'intensité optique existera en ce point si $d_1 = (2k - 1) \lambda/4$, avec k entier. Le minimum suivant correspondra à $d_2 = (2k + 1) \lambda/4$. En désignant par θ l'angle du coin d'air : $\theta = (d_2 - d_1) \text{tg} \theta$. A l'endroit du sillon de profondeur e , les franges subissent un déplacement $b = e \text{tg} \theta \simeq e \theta$ (Fig. I, 8). Ce qui donne la relation finale $e = b/a \cdot \lambda/2$.

La mesure de l'épaisseur e se ramène à celle du rapport b/a . Rappelons que l'angle doit être faible, l'ordre

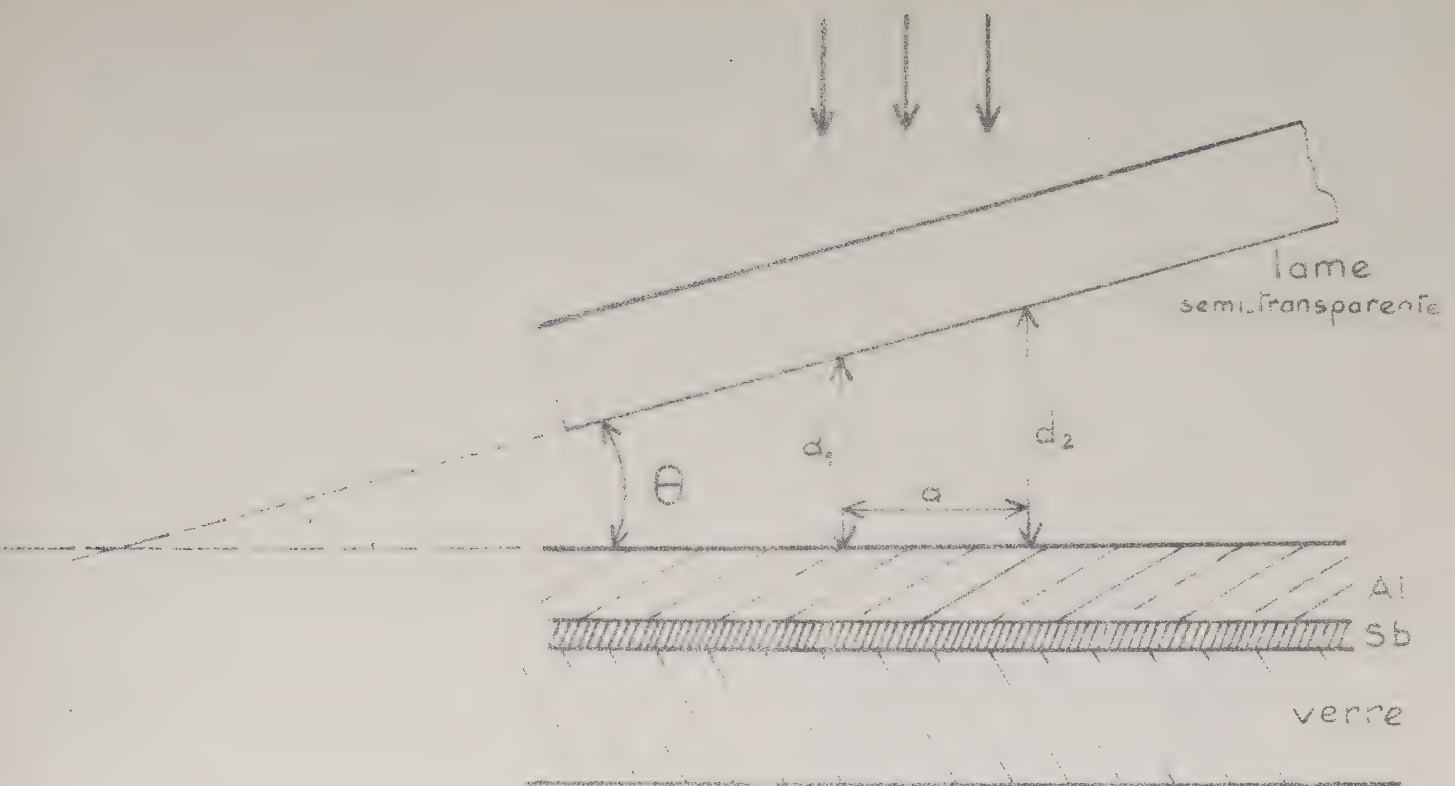


Fig. 1.7.

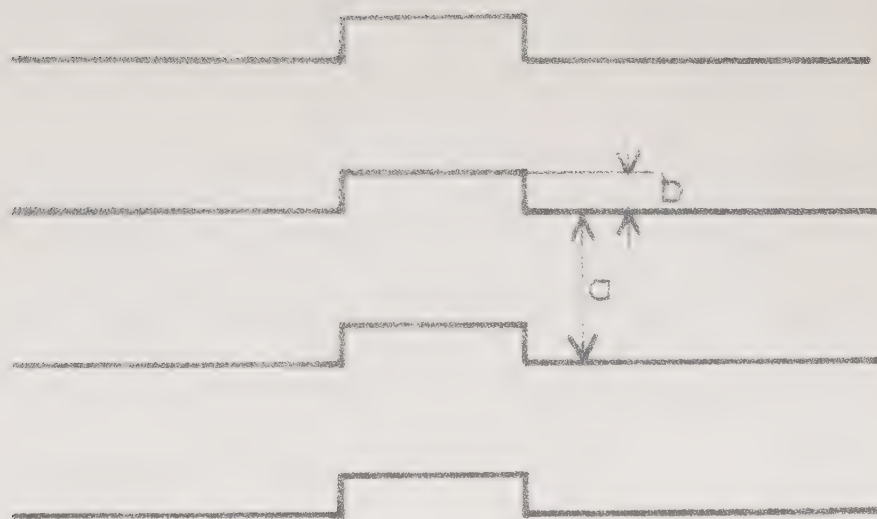


Fig. 1.8.

d'interférence peu élevé et le sillon perpendiculaire aux franges. Nous avons préféré le plus souvent, utiliser un ménisque comme lame semi-transparente, plutôt qu'une lame plane. En mesurant le rayon des anneaux de Newton observés, on peut également déterminer la profondeur du sillon.

Nous désignerons par (Fig. I, 9)

R , le rayon de courbure du ménisque,

r , le rayon des anneaux,

d_1 , la distance du centre O d'un anneau au sommet du ménisque,

d_2 , la distance du point A à la couche au dehors du sillon, et par e la profondeur du sillon (ou épaisseur de la couche).

Nous avons la relation :

$$d_1 = R - \sqrt{(R^2 - r^2)} \approx r^2/2R \quad (1)$$

En négligeant les changements de phase à la réflexion les minima d'intensité des anneaux auront lieu, hors de la rayure, pour :

$$(2) \quad d_1 + d_2 = (2k + 1) \lambda/4 \quad k = 0, 1, 2 \dots$$

et sur la rayure pour :

$$(3) \quad d_1 + d_2 + e = (2k + 1) \lambda/4 \quad k = 0, 1, 2 \dots$$

On en déduit les deux relations dans lesquelles r_k et r_{ke} sont respectivement les rayons des anneaux hors de la rayure (Fig. I, 10) et sur celle-ci.

$$(4) \quad r_k^2/2R + d_2 = (2k + 1) \lambda/4,$$

$$(5) \quad r_{ke}^2/2R + d_2 + e = (2k + 1) \lambda/4.$$

fig 1.9.

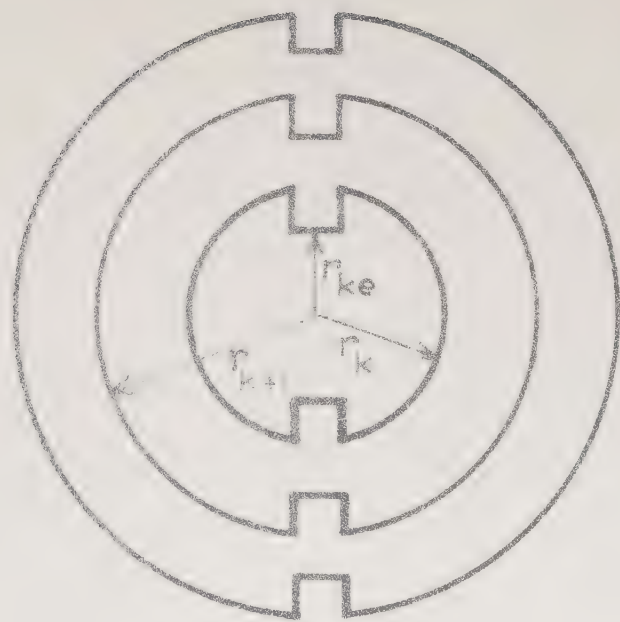
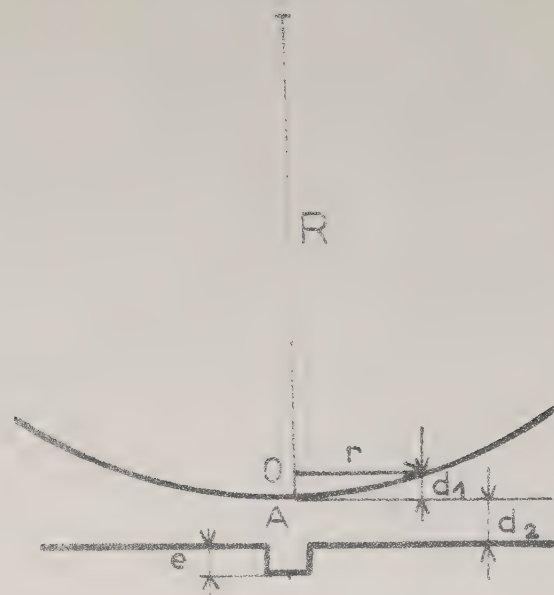


fig 1.10.

Les relations (4) et (5) donnent :

$$(6) \quad r_k^2 = 2R \left[(2k + 1) \lambda/4 - d_2 \right]$$

$$(7) \quad r_{ke}^2 = 2R \left[(2k + 1) \lambda/4 - d_2 - e \right]$$

Retranchons membre à membre : $r_k^2 - r_{ke}^2 = 2Re$,

$$\text{soit } (8) \quad e = (r_k^2 - r_{ke}^2)/2R$$

Pour éliminer R, on peut écrire :

$$r_{k+1}^2 = 2R \left[(2k + 3) \lambda/4 - d_2 \right]$$

$$\text{et } r_k^2 = 2R \left[(2k + 1) \lambda/4 - d_2 \right]$$

En retranchant membre à membre :

$$R = (r_{k+1}^2 - r_k^2) / \lambda$$

L'équation (8) s'écrit alors :

$$e = \frac{r_k^2 - r_{ke}^2}{r_{k+1}^2 - r_k^2} \cdot \lambda/2$$

A partir de la mesure de r_k , r_{k+1} et r_{ke} nous déduisons la valeur de e pour la radiation monochromatique utilisée : $\lambda = 5461 \text{ Å}$ (raie verte du mercure).

Nous avons ainsi déterminé l'épaisseur réelle de quelques couches d'antimoine. Sur la figure (I, 11) nous avons tracé la courbe ainsi obtenue et reporté la courbe de transparence. L'existence du point anguleux et l'interprétation que nous en avons donnée se trouvent confirmées.

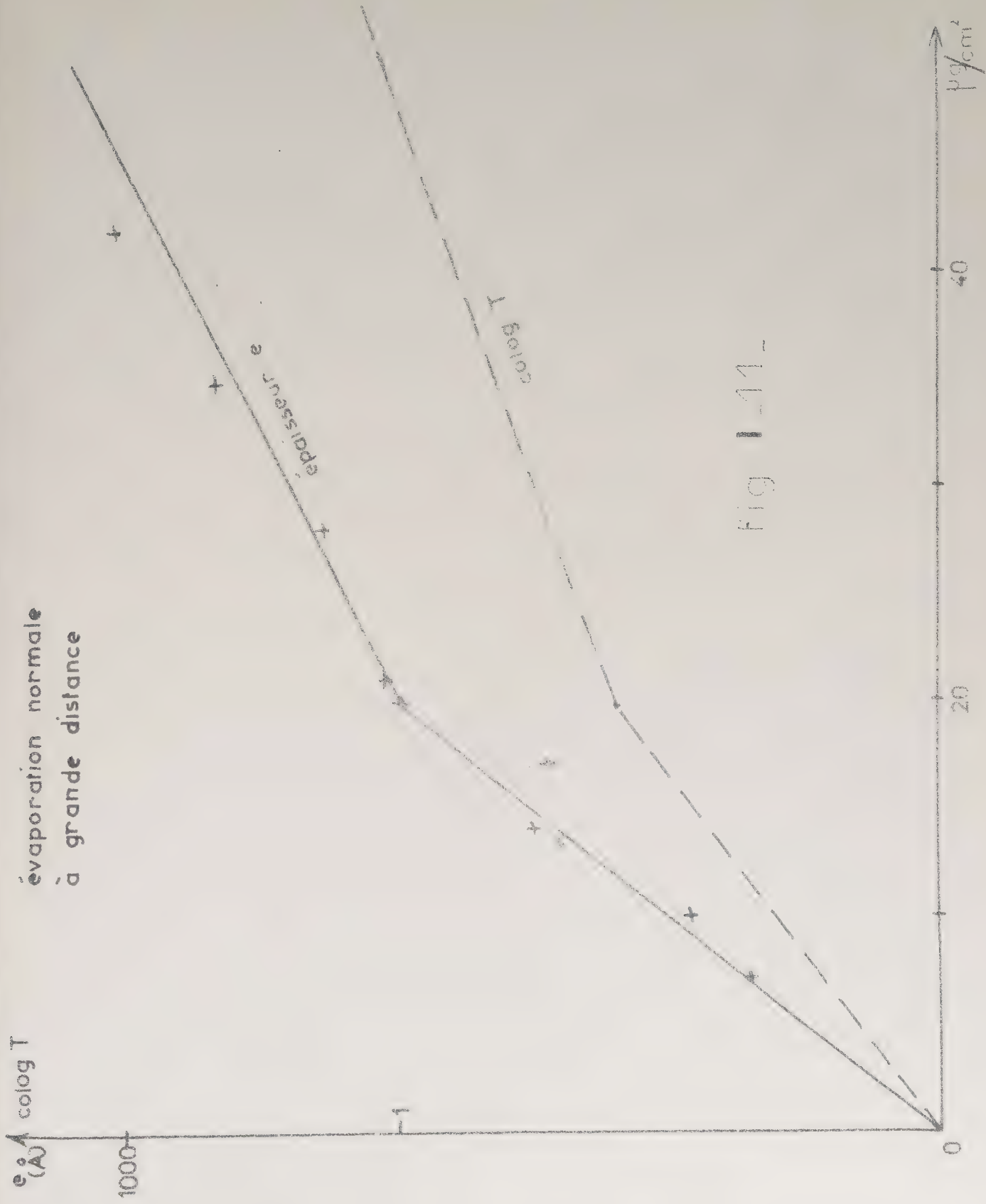


Fig 141-

CONCLUSION

Ces résultats montrent que la structure de la couche a une grande influence sur la transparence optique. Celle-ci ne permet de déterminer l'épaisseur d'antimoine que dans la mesure où les autres paramètres peuvent être contrôlés.

L'utilisation d'un évaporateur en anneau ayant donné des couches plus uniformes, nous l'avons adopté pour la suite de notre étude.

CHAPITRE II

TECHNIQUE DE FABRICATION ET DE MESURES

I - TUBES EXPERIMENTAUX

- 1) Le support de la photocathode
- 2) Les évaporateurs

II - DISPOSITIF DE POMPAGE

- 1) Pompes, pièges et sécurités
- 2) Montage sur pompe

III - SYSTEME DE MESURE DES TRANSPARENCES

IV - TRAITEMENTS SUR POMPES

- 1) Etuvage préalable
- 2) Formation de la couche d'antimoine
- 3) Formation de la photocathode

V - SOURCE DE LUMIERE MONOCHROMATIQUE

- 1) La lampe à ruban de tungstène
- 2) Le monochromateur
- 3) Correction énergétique

VI - UTILISATION D'UN FLUX LUMINEUX CONTINU

VII - UTILISATION D'UN FLUX LUMINEUX VARIABLE

VIII - ENCEINTE CRYOGENIQUE

Pour obtenir des cellules à rendement photoélectrique élevé, on procède, de nos jours, par superposition de couches minces d'antimoniure de césium. Pour connaître la quantité d'antimoine utilisée, il est nécessaire de n'effectuer qu'une seule évaporation. Cette méthode a l'inconvénient de donner des cathodes à rendement photoélectrique plus faible.

I - TUBES EXPERIMENTAUX

1) Le support de la photocathode

Nous avons utilisé des plaques de verre blanc de 1 mm d'épaisseur et de 26 x 26 millimètres. Les contacts électriques ont été obtenus en rendant conductrices les extrémités. Après avoir légèrement dépoli deux bandes latérales de 5 millimètres de large, par action de vapeurs d'acide fluorhydrique, une mince pellicule de solution d'acide chloroplatinique dans de l'essence de lavande y est déposée. Après traitement thermique (environ deux heures à 500°) ce dépôt est transformé en un film de platine très adhérent et bon conducteur. On renouvelle cette opération jusqu'à obtenir une résistivité inférieure à 50 Ω /mm. Les extrémités conductrices de la plaque de verre sont enfin serrées entre deux lames d'acier inoxydable sur lesquelles sont fixées les amenées de tension et qui servent à maintenir fermement l'élément d'étude. Par mesure de précaution le contact platine-acier inoxydable est amélioré par du graphite colloïdal. La figure II, 1 représente le dispositif final obtenu.

2) Les évaporateurs

Nous avons précédemment indiqué que la technique d'évaporation sous grands angles permet l'obtention de couches uniformes. Pour celles-ci, nous avons utilisés des anneaux

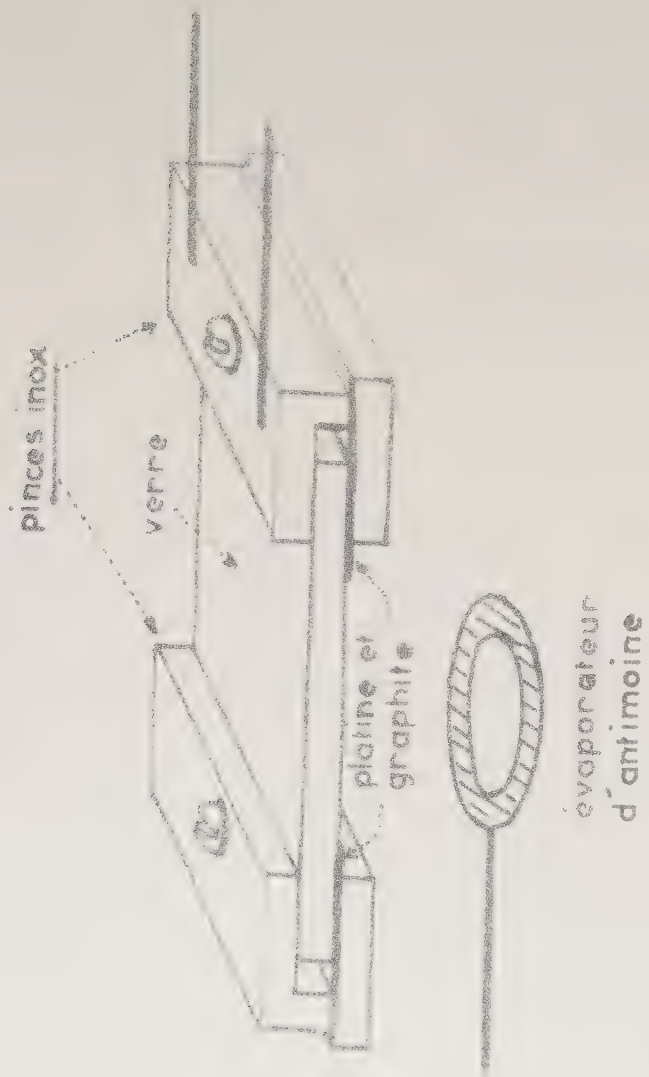


fig 11 1

de molybdène, de rayon $R = 7$ mm et de largeur $R/5$.

Nous avons également réalisé des couches d'épaisseur variable; l'évaporateur utilisé était alors un ruban de molybdène de 3 mm de large et de 18 mm de long, soudé sur un fil de nickel de 1 mm de diamètre et incliné par rapport au plan de la plaque.

Dans les deux cas le molybdène est recouvert d'antimoine par une évaporation préalable, sous vide. Le molybdène a été choisi de préférence au nickel car à une température voisine de celle de l'évaporation, ce dernier donne un complexe avec l'antimoine, complexe qui ne s'évapore qu'à une température beaucoup plus élevée, de l'ordre de 1000° C. Il est cependant possible d'utiliser du nickel à condition d'en élever très progressivement la température ce qui est difficilement réalisable avec le chauffage en haute fréquence utilisé.

II - DISPOSITIF DE POMPAGE

1) Pompes, pièges et sécurités

La pompe primaire employée est une pompe à palettes Beaudouin de $5 \text{ m}^3/\text{h}$. Une pompe à diffusion de vapeur de mercure permet, grâce à ses trois étages, d'obtenir un vide de quelques 10^{-8} torr, lorsque la vapeur de mercure est convenablement piégée à l'azote liquide. Une alimentation automatique (représentée sur la figure II, 2) de remplissage du piège, y maintenant un niveau constant, a été réalisée pour permettre des étuvages prolongés sans aucune surveillance.

L'autonomie en azote liquide est d'une douzaine d'heures avec une réserve de 8 litres. Celle-ci est constituée par un vase Dewar, placé à l'intérieur d'un récipient métallique fermé par une plaque de plexiglas; un joint torique assure l'étanchéité.

La mise en route du système d'alimentation est provo-

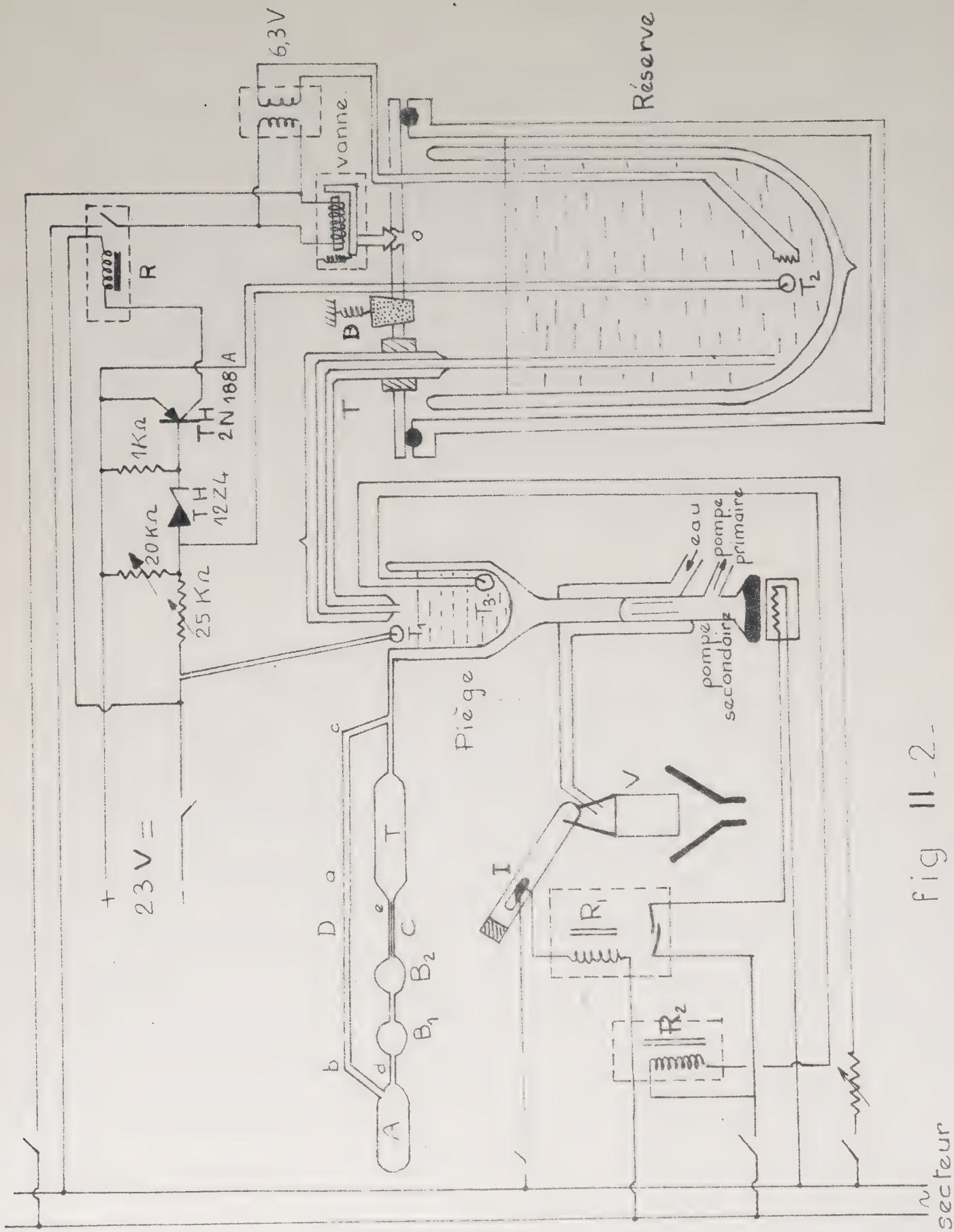


Fig II-2-

quée par l'échauffement de la thermistance T_1 lorsque le niveau d'azote liquide baisse dans le piège. Cet échauffement fait varier la tension émetteur-base d'un transistor, variation accentuée par la présence d'une diode Zener, de sorte qu'un courant collecteur important s'établit assez brusquement. Ce courant agit sur un relais sensible R et la vanne électromagnétique est excitée, fermant, grâce à un pointeau, l'orifice O du récipient contenant le vase Dewar.

La pression du gaz augmente dans la réserve, en raison de la vaporisation permanente de l'azote liquide. On accélère cette vaporisation, au moment où l'orifice O se ferme, en faisant passer un courant électrique dans la résistance . L'augmentation de pression fait monter l'azote liquide par le tube T muni d'une double paroi dans la partie qui est à l'air libre, et le niveau d'azote remonte dans le piège jusqu'au moment où l'augmentation de résistance de la thermistance T_1 entraîne la réouverture de l'orifice O grâce à un ressort de rappel. Le bouchon B de remplissage, maintenu par un ressort, constitue une sécurité de pression à l'intérieur de la réserve. On peut ainsi maintenir un niveau constant dans le piège à quelques mm près.

Lorsque la réserve est vide, la vanne tend à être continuellement excitée. On évite cette excitation inutile et prolongée grâce à la thermistance T_2 dont la résistance est alors suffisamment faible pour limiter la tension émetteur-base du transistor. A partir du moment où la réserve est vide, le piège, d'abord plein, peut assurer encore environ deux heures de fonctionnement. Si l'on n'intervient pas avant la fin de ce laps de temps, la thermistance T_3 , placée au fond du piège s'échauffe et le relais R_2 à contact repos est excité, coupant l'excitation du relais R_1 à contact travail, et arrête le chauffage de la pompe secondaire.

On a également prévu d'arrêter automatiquement ce

chauffage si la circulation d'eau de refroidissement de la pompe secondaire vient à devenir insuffisante pour une raison quelconque, en coupant l'excitation du relais R_1 par basculement d'un interrupteur à mercure I. Cet interrupteur est maintenu dans sa position normale, correspondant au chauffage de la pompe, par le poids de l'eau contenue dans le vase V. Cette eau est celle qui a refroidi la pompe; un trou calibré au fond du vase permet son écoulement. Cette sécurité de débit entraîne une perte de charge négligeable dans la circulation d'eau.

Une jauge à ionisation permet de suivre l'évolution de la pression résiduelle de notre installation.

2) Montage sur pompe

La figure II, 2 donne un aspect de notre dispositif.

Le tube T est soudé à la rampe de verre en bout de canalisation et se prolonge par le générateur de césium A. Cette liaison est assurée par un capillaire C. Afin de ne pas limiter la vitesse de pompage il est donc nécessaire de relier le générateur de césium à la rampe par une dérivation D.

III - SYSTEME DE MESURE DES TRANSPARENCES

La détermination de l'épaisseur de la couche d'antimoine doit être effectuée avant l'introduction du césium, et sa transparence mesurée sur la pompe.

Pour des couches uniformes le même dispositif que celui qui a servi à l'étalonnage sous la cloche a été employé.

Pour des couches à épaisseur variable, cet ensemble sera complété par un condenseur, éclairant une fente dont on forme l'image sur la lame de verre parallèlement à son grand côté. Cet ensemble (Fig. II, 3) peut être déplacé, grâce à une vis micrométrique, perpendiculairement à la direction de la fente. On peut ainsi explorer la lame avant et après évaporation.

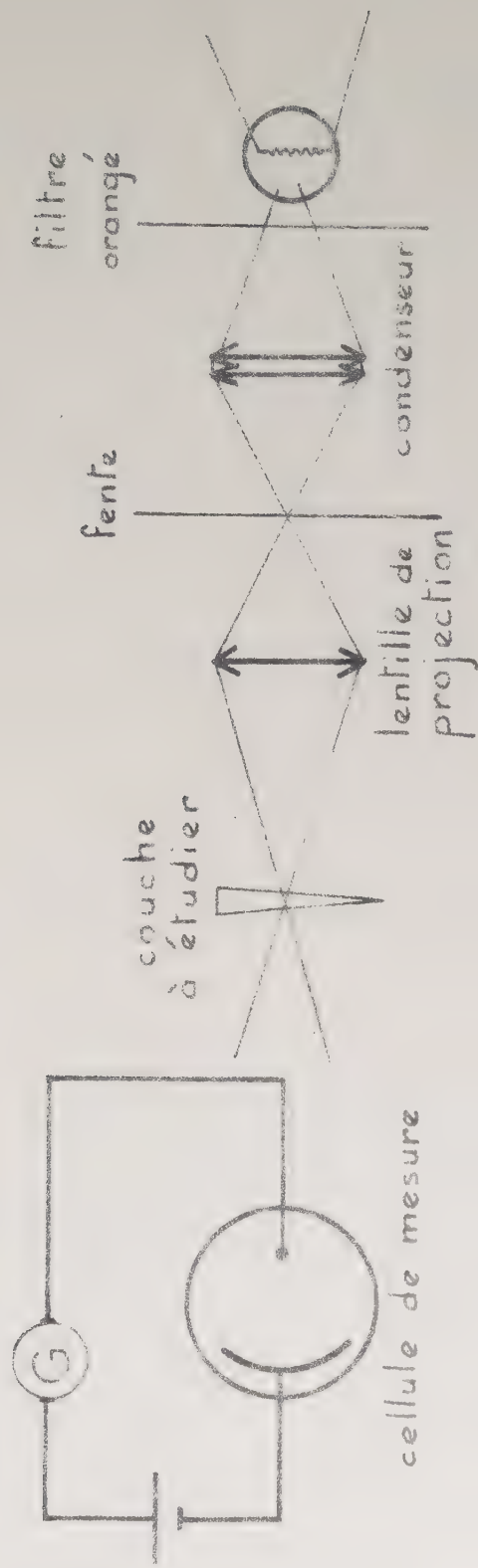


fig II 3

IV - TRAITEMENTS SUR POMPES

1) Étuvage préalable

Il est nécessaire d'éliminer les impuretés des surfaces ainsi que les gaz occlus, avant de procéder aux évaporations. Pour cela, on soumet, sous un vide aussi bon que le permet notre installation, l'ensemble tube et générateur de césium à un étuvage d'une durée minimale de quatre heures. En raison de la présence d'antimoine sur l'évaporateur les tubes ne sont traités qu'à 250° C, alors que les réservoirs de césium sont portés à 450° C.

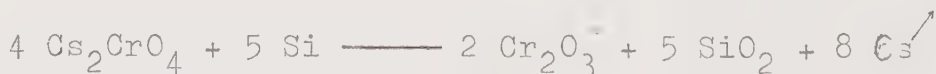
2) Formation de la couche d'antimoine

Pour réaliser des couches uniformes, l'anneau évaporateur est placé parallèlement à la lame de verre, tandis que pour des couches à épaisseur variable, l'évaporateur est à environ 60° du plan de la plaque de verre. L'évaporation a lieu par chauffage haute fréquence.

3) Formation de la photocathode

Le tube est maintenu à une température de 150° C $\pm$ 5° C. On obtient alors une réaction césium-antimoine rapide. L'étuve utilisée comporte une fenêtre de mica à travers laquelle sera éclairée la future photocathode. L'évaporateur d'antimoine jouera le rôle d'anode; une différence de potentiel de 128 volts est appliquée entre ces deux électrodes.

Le césium nécessaire est obtenu par décomposition thermique d'un mélange, en poids, de 2/3 de silicium et de 1/3 de chromate neutre de césium finement broyé, suivant la réaction :



Dans la première phase de cette élévation de température, il se produit un assez fort dégazage. Le césium libéré se condense sur les parois de l'enveloppe A. Il est nécessaire de laisser un excellent vide s'établir à nouveau dans l'ins-

tallation avant de procéder au scellement de la dérivation D en a, puis en b et c (Fig. II, 2). En chauffant légèrement on distille le césium successivement dans les boules B₁ et B₂. Cette opération effectuée, on peut supprimer le tube A (scellement d). Grâce au capillaire C, une faible quantité de césium est envoyée très lentement vers la photocathode dont on suivra la formation. Le capillaire est scellé en e lorsque le maximum de photoémission aura été atteint. Afin d'éliminer l'excès de césium et de stabiliser les propriétés de la couche, l'étuvage à 150° C est maintenu pendant une heure tout en faisant débiter la cathode photoémissive.

V - SOURCE DE LUMIERE MONOCHROMATIQUE

Nous avons utilisé une lampe à ruban de tungstène pour éclairer la fente d'entrée d'un monochromateur. Suivant les études entreprises, nous avons eu besoin soit de concentrer le faisceau émergeant sur un domaine étroit de la photocathode en y réalisant l'image de la fente de sortie, soit de disposer d'un faisceau suffisamment large pour recouvrir toute la couche photoélectrique.

1) La lampe à ruban de tungstène

Une telle source de lumière est très sensible aux fluctuations de la température du ruban incandescent; les mesures optiques nécessitant une grande stabilité d'éclairement, le ruban sera alimenté à tension constante soit par des batteries d'accumulateurs de grande capacité, soit à l'aide d'une source alternative stabilisée en tension. Pour obtenir les répartitions spectrales désirées, quatre tensions différentes ont été successivement employées. Les caractéristiques de l'émission ont été calculées suivant la méthode classique : de la température de brillance T_b déterminée par des visées effectuées au micropyromètre optique Ribaud (Jo-

bin et Yvon) nous avons déduit, en utilisant les tables de Fabry, la température vraie T_V et la température de couleur T_C . Rappelons que la température de couleur T_C correspondant à une température de brillance donnée T_B est celle du corps noir émettant le même rayonnement que le corps gris considéré à cette température T_B . On est donc amené à tracer la courbe de répartition spectrale de l'énergie émise par le corps noir à la température T_C . Cette courbe présente un maximum donné par la loi de Wien : $\lambda_m T_C = 2894$, en exprimant λ_m en microns et T_C en degrés Kelvin. Les températures et la position du maximum d'émission sont données dans le tableau I.

Tableau I

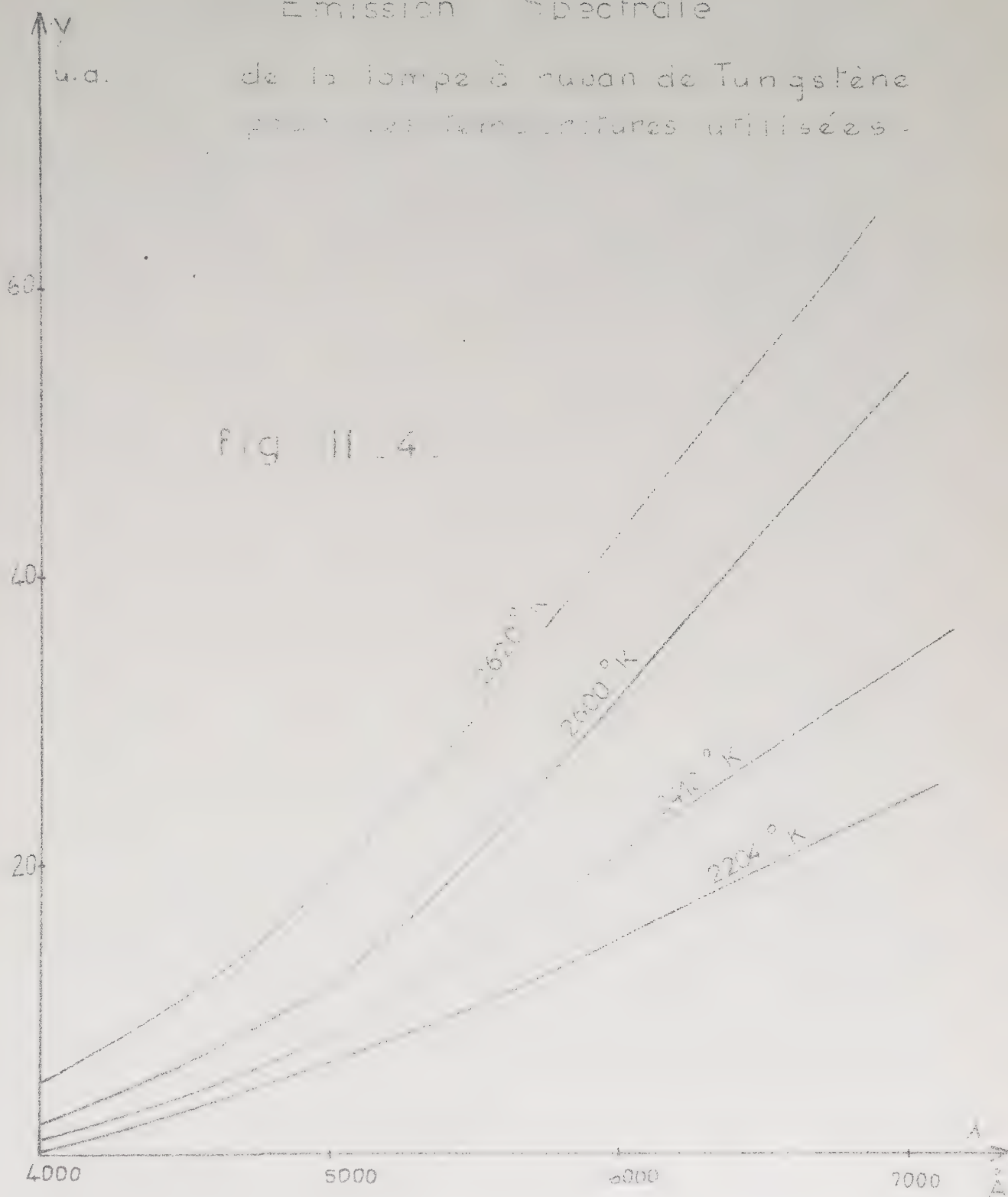
T_B en °K	2030	2200	2357	2369
T_V en °K	2204	2410	2600	2620
T_C en °K	2246	2460	2663	2831
λ_m en Å	12870	11750	10867	10223

Les tables de Fabry permettent de tracer une courbe se déduisant de la courbe d'émission spectrale par une affinité orthogonale ayant pour base l'axe des longueurs d'onde. A chaque valeur de la variable $x = \lambda / \lambda_m$ correspond une valeur de $y = F(\lambda)$, soit, à une constante multiplicative près, la valeur de l'énergie lumineuse émise par la source pour la longueur d'onde considérée (Fig. II, 4).

Emission Spectrale

de la lampe à ruban de Tungstène
pour les températures utilisées.

Fig II 4.



2) Le monochromateur

On forme l'image du ruban de tungstène incandescent sur la fente d'entrée. Le faisceau lumineux est dispersé par un prisme concave dont la face postérieure est argentée. Pour chaque longueur d'onde on obtiendra directement sur la fente de sortie une image nette de la fente d'entrée, sans l'intermédiaire de lentille collimatrice ni d'objectif. Ce monochromateur se caractérise par sa grande luminosité. Les déplacements du prisme parallèlement à lui-même sont repérés sur un tambour gradué en centièmes de millimètre. Suivant la position du prisme et l'ouverture de la fente de sortie, on peut obtenir, autour d'une longueur d'onde déterminée, un certain intervalle spectral. A l'aide d'une série de lampes spectrales (voir Tableau II), nous avons tracé la courbe d'étalonnage (Fig. II, 5) donnant la longueur d'onde du faisceau émergeant en fonction de la position du tambour.

L'intervalle spectral $\Delta\lambda$ est donné par la relation $\Delta\lambda = D \cdot e$, où D désigne la dispersion en angströms par millimètre et e la largeur de la fente de sortie exprimée en millimètres. Cette dispersion dépend de λ , elle est plus importante dans le rouge que dans le violet; il est nécessaire de tracer la courbe donnant D en fonction de λ . La rotation du tambour était proportionnelle au déplacement du prisme nécessaire pour balayer un intervalle de $100 \text{ \AA}$ de part et d'autre de la longueur d'onde utilisée. On a tracé sur la figure II, 6, la courbe $l = f(\lambda)$ d'où l'on peut déduire D qui est inversement proportionnel à l .

3) Correction énergétique

Pour chaque longueur d'onde λ , la fente de sortie laisse passer une énergie ΔW_λ . Il suffit de connaître, pour chaque valeur de λ , un nombre proportionnel à cette énergie pour pouvoir ramener les mesures photoélectriques à

Tableau II

Raies utilisées pour l'étalonnage du monochromateur

Elements	Longueurs d'onde en Å	Elements	Longueurs d'onde en Å
He	4 026	Na	4 980
Hg	4 047	He	5 016
Hg	4 077	Cd	5 085
Hg	4 358	Na	5 150
He	4 388	Hg	5 461
Cd	4 415	Na	5 686
He	4 471	Hg	5 769
Cd	4 678	Hg	5 791
He	4 713	He	5 876
Cd	4 800	Na	5 893
Hg	4 916	Na	6 158
He	4 922	Cd	6 438
		Hg	6 907

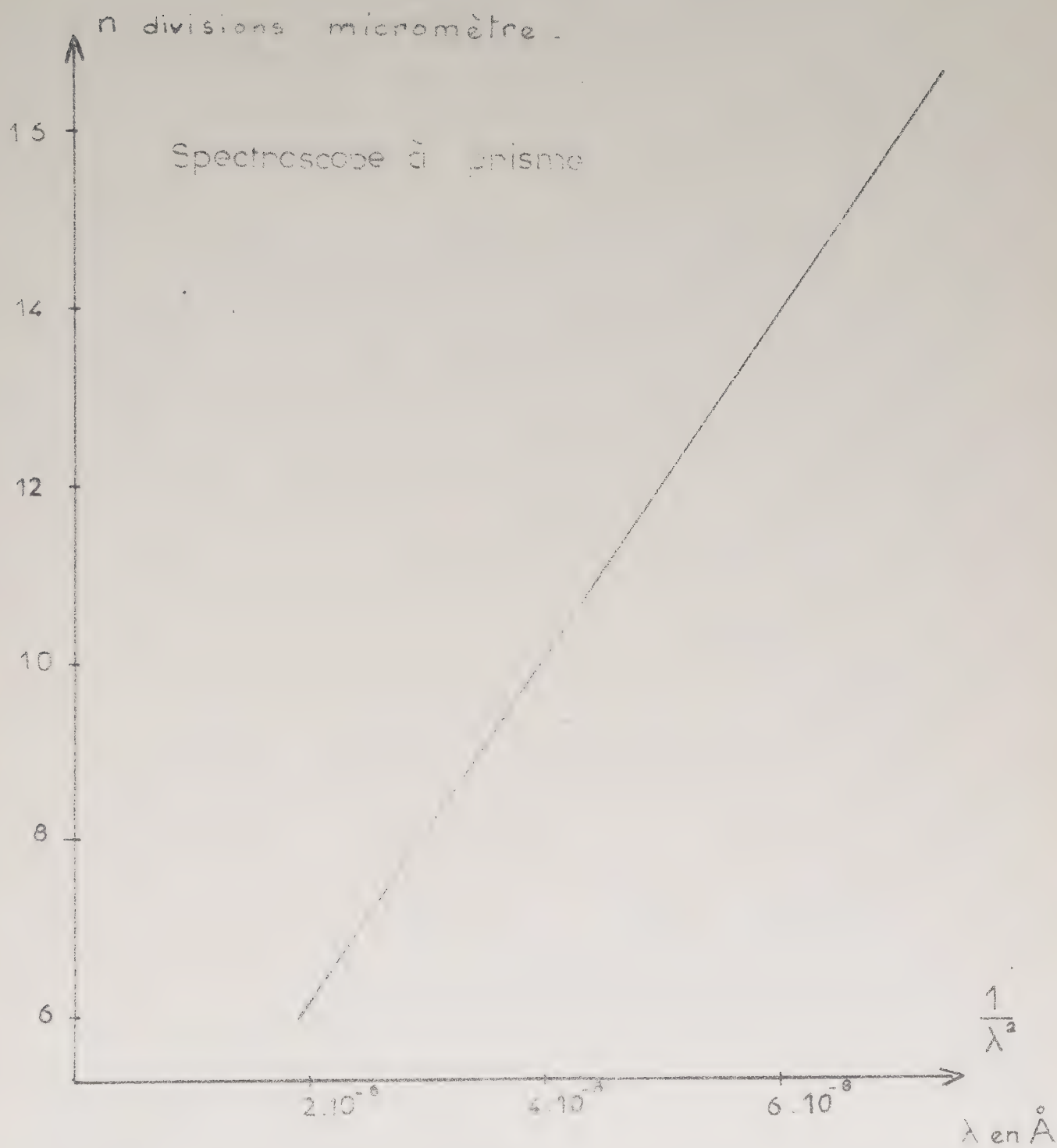
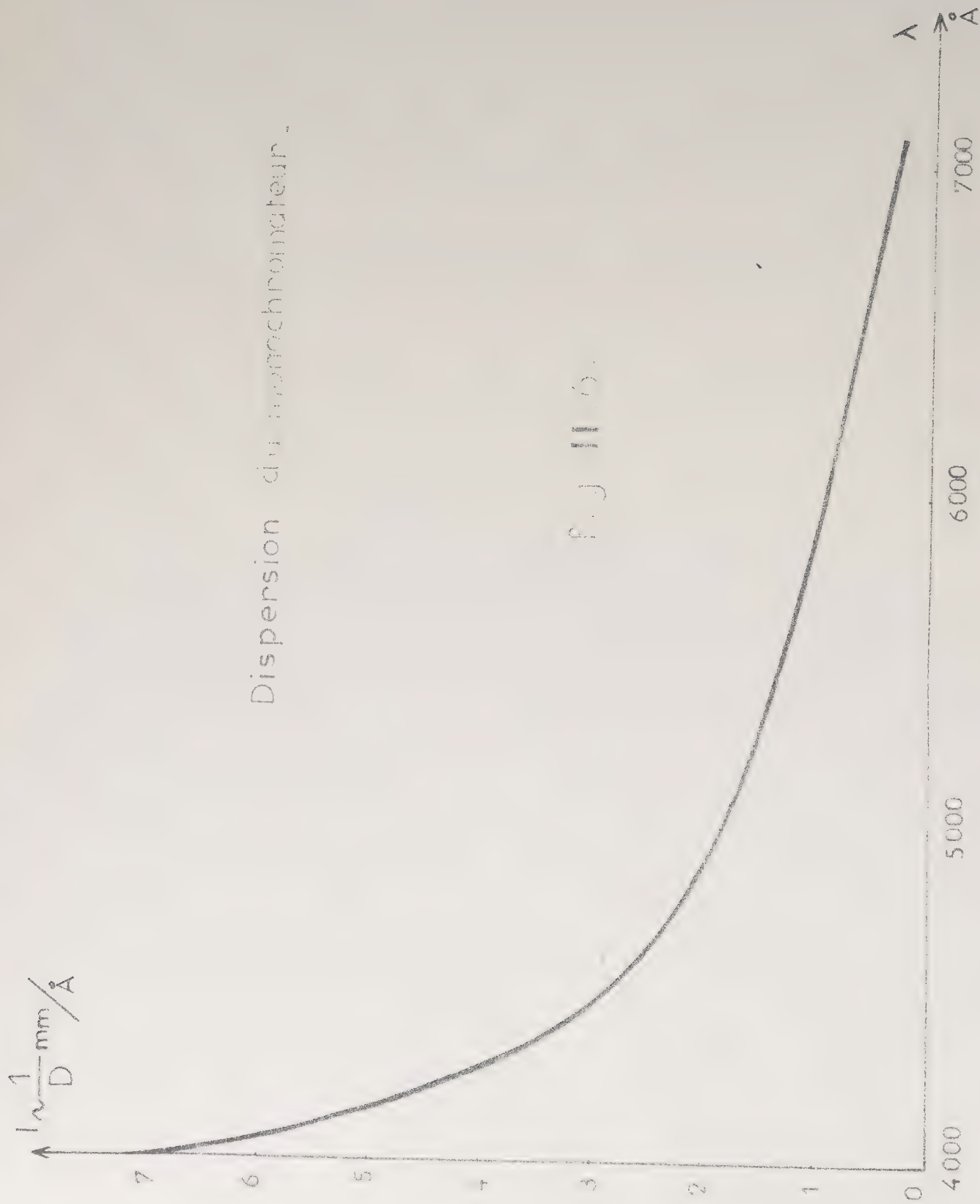


Fig II-5-

Dispersion du monochromateur

P. J. 11.01.



une énergie constante dans tout le spectre. Ce nombre dépend de la température de la source et de la dispersion du monochromateur : le tableau III donne le rapport $1/y$ pour chaque longueur d'onde et pour les diverses températures du ruban de tungstène.

VI - UTILISATION D'UN FLUX LUMINEUX CONTINU

Les courants à mesurer pouvant être très faibles, nous avons été conduit à protéger électrostatiquement aussi bien les cellules que les différents appareils de mesure, les sources de tension et les fils de connexion.

Les mesures des courants continus ont été effectuées, suivant les cas, à l'aide d'un microampèremètre Séfram, d'un galvanomètre Séfram ($8,9 \cdot 10^{-11}$ A/m), d'un nanoampèremètre à Chopper (Ballantine Laboratories Inc. Model 365) ou même d'un picoampèremètre Lemouzy.

Pour les mesures sur les couches photoélectriques à épaisseur variable, la cellule expérimentale est montée sur un chariot que l'on peut déplacer, perpendiculairement à l'axe du monochromateur, à l'aide d'une vis micrométrique dont le pas est de $1/2$ mm. Afin d'explorer la photocathode avec la même précision que lors des mesures de densité optique, la plage éclairée a une largeur inférieure à un millimètre, ce qui nous permet de la considérer sensiblement comme une ligne d'égale épaisseur.

VII - UTILISATION D'UN FLUX LUMINEUX VARIABLE

Pour certaines mesures, le faisceau lumineux issu du monochromateur est haché par un disque métallique (Fig. II, 7) tournant à 10 tours par seconde et sur la périphérie duquel ont été découpés trente créneaux tels que la durée d'éclai-

Tableau III

Longueurs d'onde en Å	Correction énergétique 1/γ pour diverses températures du tungstène			
	2204 °K	2410 °K	2600 °K	2620 °K
4000	1224	491,2	239	145,5
4100	666,8	273,8	139	86,44
4200	443,5	187,4	96,3	61,17
4300	314,8	136,0	72,7	46,99
4400	231,2	104,4	56,5	37,15
4500	171,1	78,80	44,0	29,43
4600	129,0	60,86	34,3	23,30
4700	98,90	47,80	27,7	19,09
4800	73,34	36,70	21,6	15,06
4900	56,58	28,84	15,7	12,33
5000	43,66	23,04	13,9	10,08
5100	35,49	19,09	12,0	8,662
5200	29,54	16,35	10,2	7,470
5300	24,26	13,55	8,69	6,453
5400	18,75	10,71	6,97	5,236
5500	17,16	9,26	6,16	4,677
5600	13,86	8,14	5,46	4,191
5700	11,48	6,84	4,68	3,626
5800	9,51	5,74	4,01	3,132
5900	8,21	5,14	3,57	2,819
6000	7,20	4,51	3,19	2,541
6100	5,95	3,78	2,72	2,184
6200	4,95	3,17	2,30	1,864
6300	3,99	2,62	1,93	1,576
6400	3,25	2,15	1,60	1,315
6500	2,58	1,73	1,30	1,078
6600	2,19	1,50	1,13	0,9478
6700	1,86	1,28	0,984	0,8283
6800	1,39	0,97	0,753	0,6384

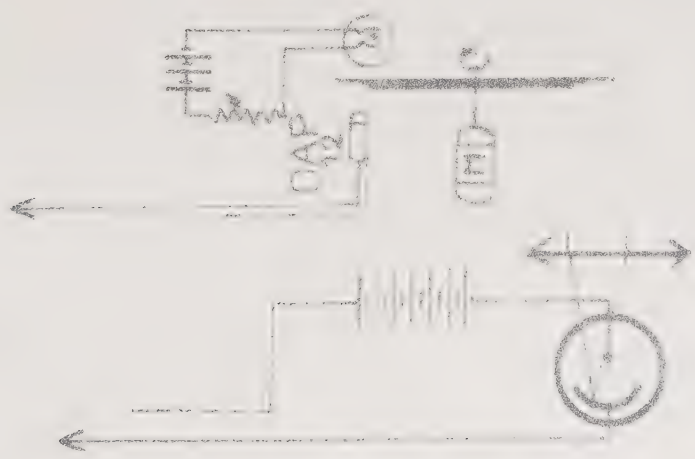
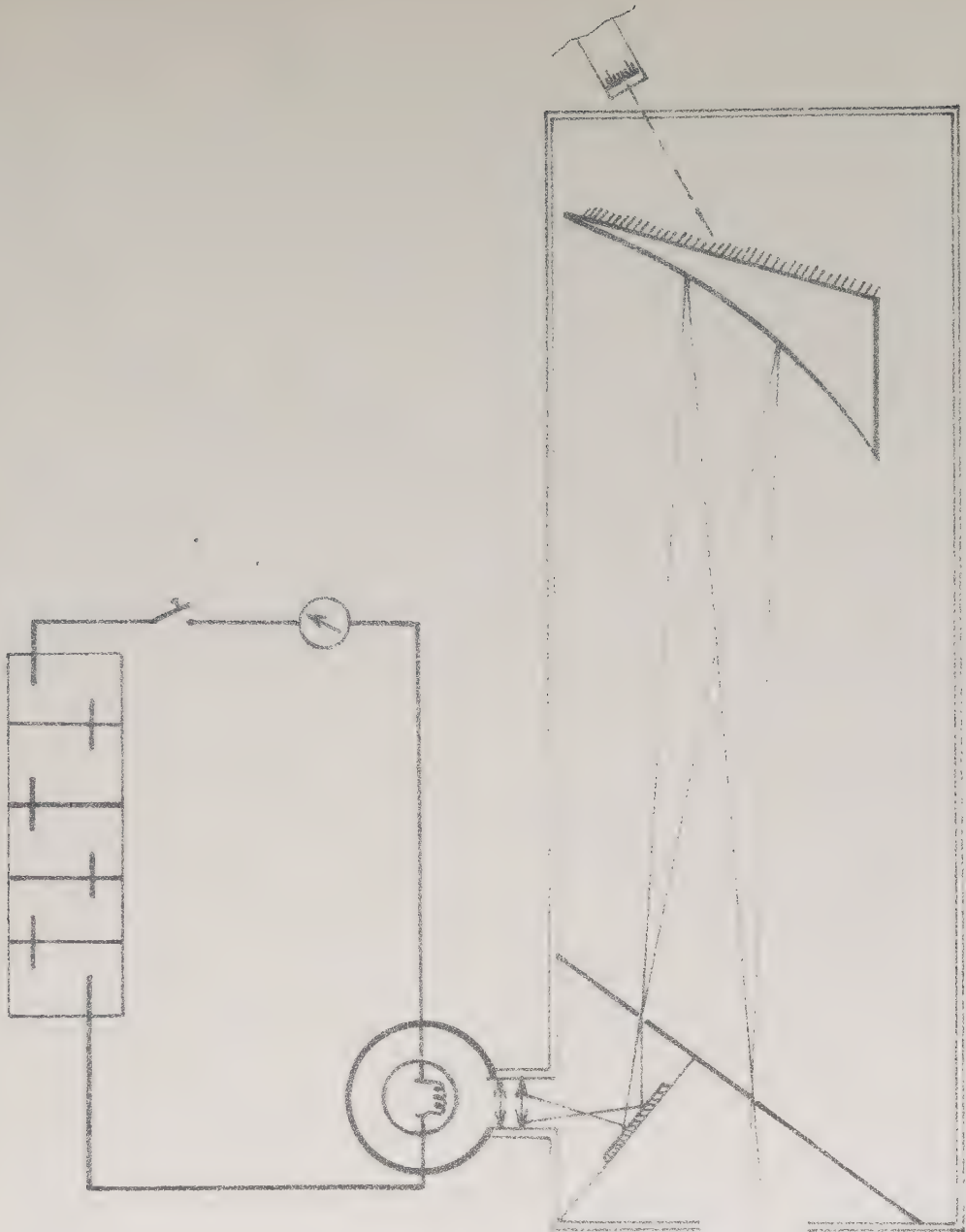


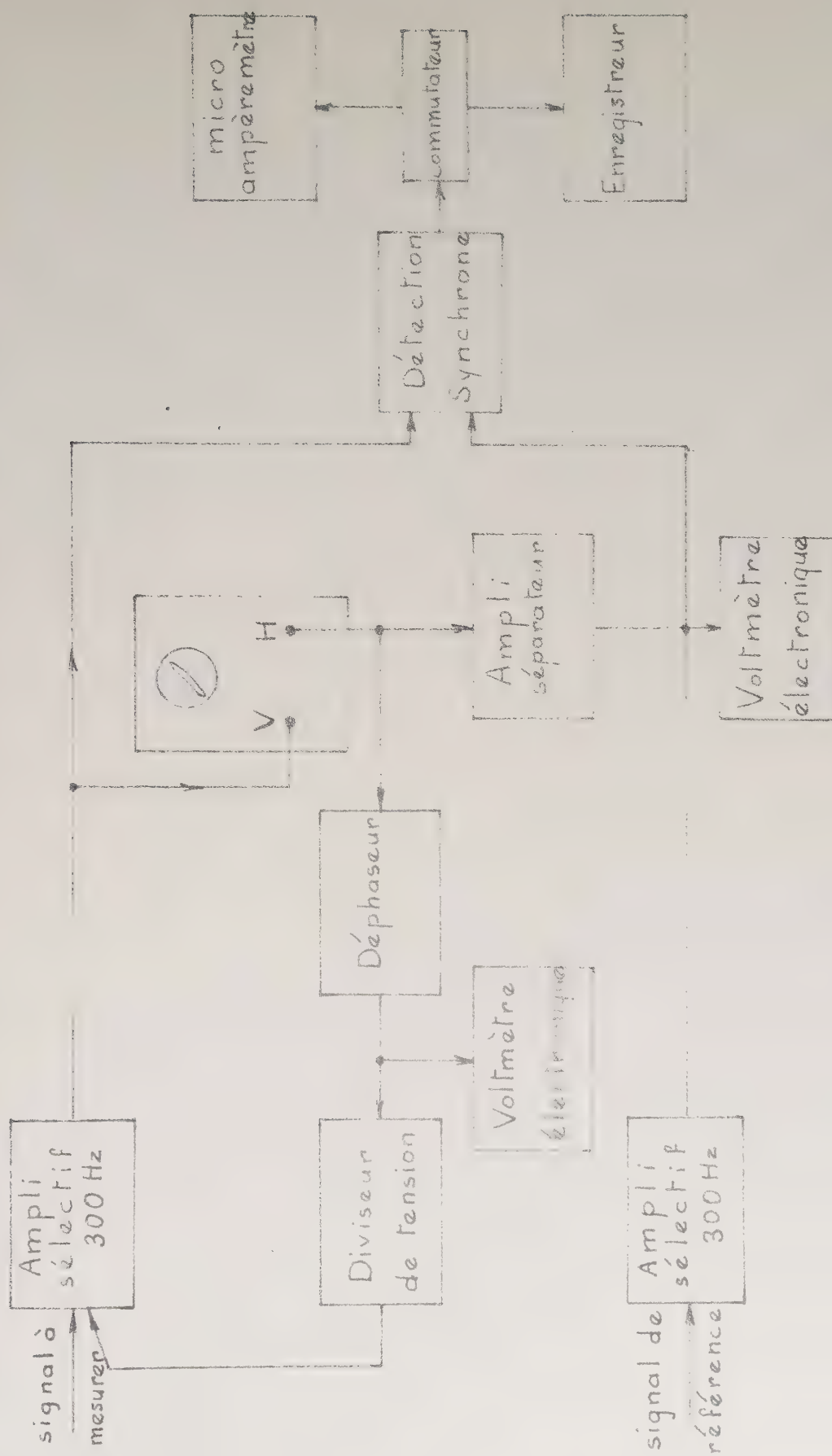
Fig 11.7

rement soit égale à la durée d'obscurité. Le flux constitue ainsi un signal périodique à la fréquence de 300 Hertz. Un amplificateur sélectif à 300 Hz transforme la réponse de la photocathode en un signal sinusoïdal à cette fréquence.

Le "bruit" dû aux contacts avec la couche mince est considérablement réduit grâce à une détection synchrone; le signal de référence nécessaire est obtenu à l'aide d'une photodiode au germanium (OAP 12) éclairée par une lampe auxiliaire dont le flux est également haché par le disque tournant. Ce signal est amplifié sélectivement et l'amplitude de la tension sinusoïdale obtenue est maintenue constante. Un voltmètre électronique permet, à tout moment, d'en contrôler la valeur. En déplaçant la photodiode par rapport à la fente du monochromateur, il est possible d'obtenir l'accord de phase des deux signaux. Après détection le courant obtenu est mesuré à l'aide d'un microampèremètre; il peut également être enregistré. L'étalonnage du dispositif est effectué, dans les deux cas, en injectant une fraction connue du signal de référence à la place de celui à mesurer. L'ensemble de cette installation est schématisé sur la figure II, 8. La figure II, 9 représente les courbes d'étalonnage obtenues. Un tel dispositif permet de mesurer des courants inférieurs à 10^{-13} A.

VIII - ENCEINTE CRYOGENIQUE

L'enceinte que nous avons réalisée (fig. II, 10) pour les mesures en fonction de la température comprend un récipient cylindrique en acier inoxydable dont le fond est traversé par un barreau de cuivre qui plonge dans l'azote liquide. Un vide d'environ 10^{-2} torr est maintenu dans l'enceinte. Le tube à étudier est placé dans un cylindre de cuivre vissé dans le barreau.



Shéma fonctionnel des mesures à 300 Hz

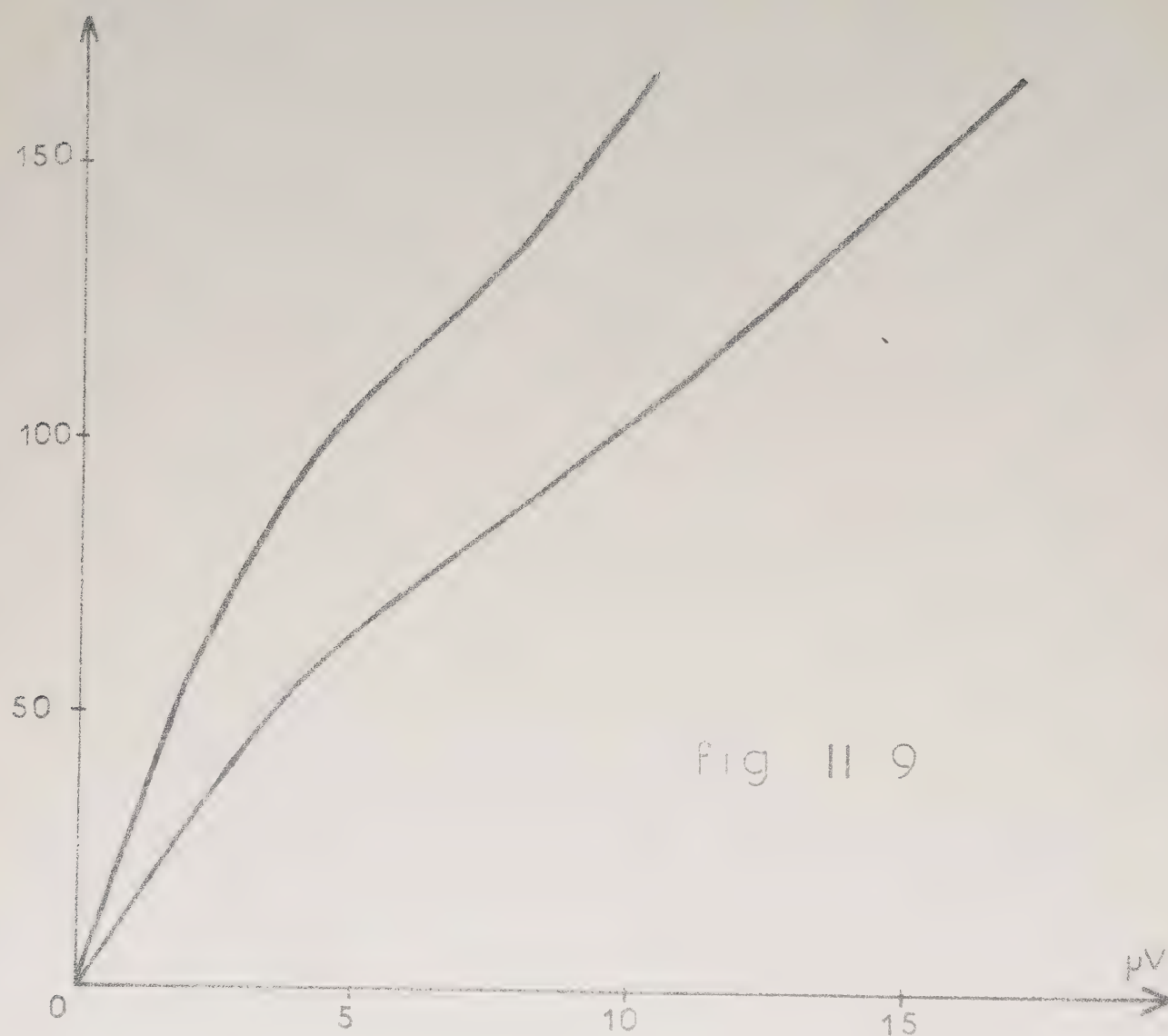
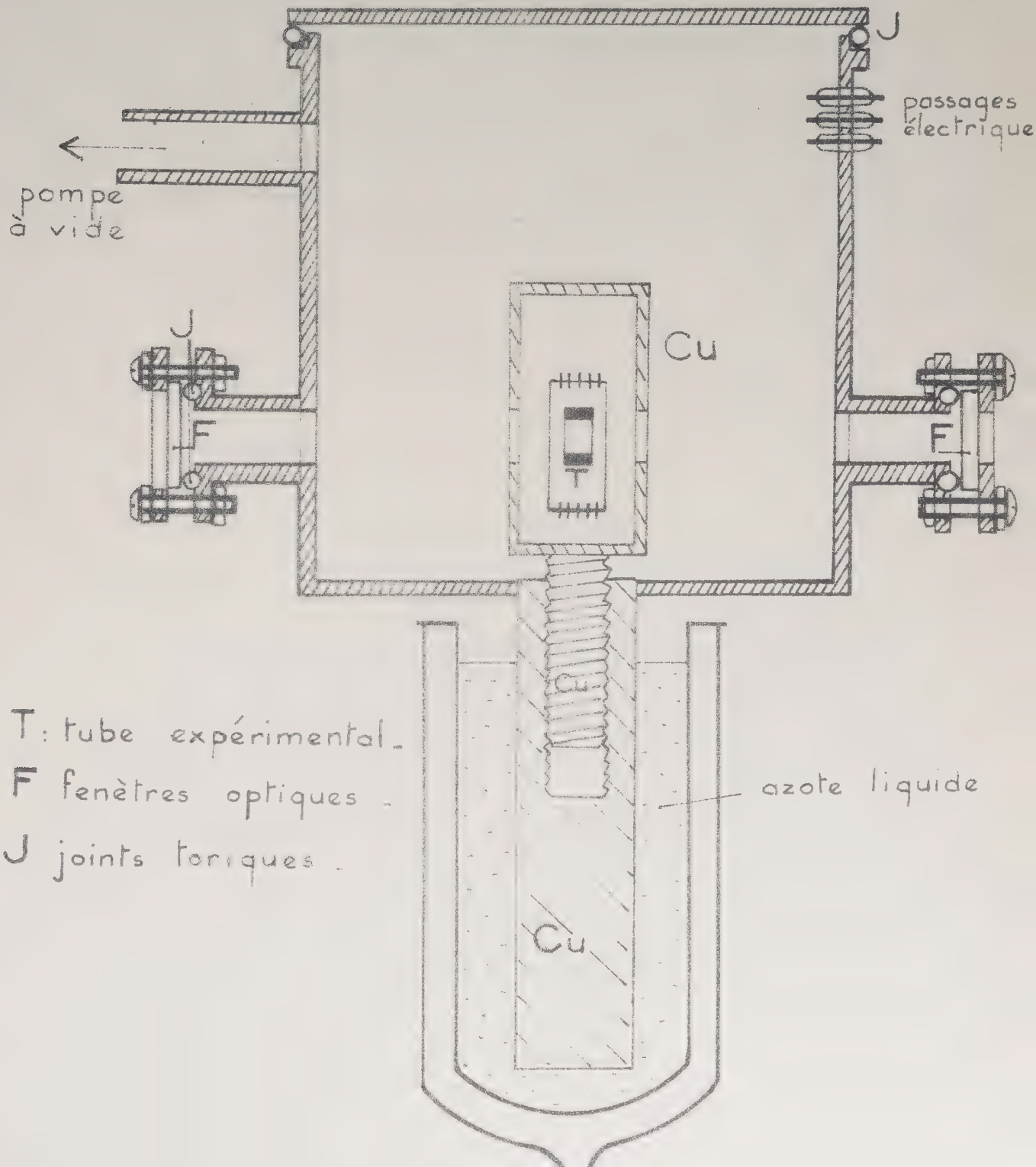


fig II 9

Etalonnage du dispositif de
mesures photoélectriques à
300 Hz, pour diverses sensibi-
lités de l'amplificateur sé-
lectif

fig II 10 -



T: tube expérimental.

F fenêtres optiques.

J joints toriques.

azote liquide

L'ensemble ainsi réalisé possède une grande inertie calorifique : il faut environ deux heures pour que la photocathode atteigne une température voisine de -100°C , et six ou sept heures sont nécessaires pour revenir à la température ambiante après évaporation de l'azote liquide.

Des fenêtres de verre plan sont destinées à permettre des mesures optiques; elles sont placées de manière à éviter toute condensation. Les températures sont déterminées à l'aide d'un thermocouple cuivre-constantan placé dans le tube même, aussi près que possible de la photocathode.

CHAPITRE III

ETUDE DE LA PHOTOEMISSION

I - LES MODELES ELECTRONIQUES

II - LE SEUIL PHOTOELECTRIQUE

III - L'EFFET DE SURFACE ET L'EFFET DE VOLUME

- 1) Effet de volume
- 2) Effet de surface

IV - PHOTOCONDUCTION

V - PHOTOEMISSION

- 1) Sensibilité spectrale
- 2) Variation de la photoémission avec l'épaisseur

VI - REPARTITION ENERGETIQUE DES PHOTOELECTRONS AU VOISINAGE
DU SEUIL

VII - PROPRIETES ELECTRIQUES

I - LES MODELES ELECTRONIQUES

La théorie de l'émission photoélectrique de Fowler permet d'en prévoir les variations avec la température au voisinage du seuil, et de déterminer le travail de sortie correspondant au zéro absolu à partir de mesures effectuées à la température ordinaire. Basée sur le modèle électronique de Sommerfeld, elle est acceptable pour les métaux mais ne peut s'appliquer aux semi-conducteurs. Un électron d'énergie E sera représenté par une onde qui, au point M caractérisé par le vecteur position $\overrightarrow{OM} = \vec{r}$ et à l'instant t , aura pour valeur $\Psi(\vec{r}) \exp(-2\pi j \frac{Et}{h})$

Cette fonction devra être solution de l'équation de Schrödinger :

$$\frac{h^2}{8\pi^2 m} \Delta \Psi + [E - V(\vec{r})] \Psi = 0,$$

où $V(\vec{r})$ désigne l'énergie potentielle de l'électron au point M par rapport au vide.

La propagation de cette onde est caractérisée par un vecteur $\vec{k}$; l'énergie de l'électron lui est liée par l'équation :

$$E = V + \frac{k^2 h^2}{2m} \quad \text{si } V \text{ ne varie pas avec } \vec{r}$$

Un solide cristallisé ayant une structure périodique, on peut, en première approximation, admettre que l'électron y est soumis à l'action d'un potentiel périodique mais constant dans le temps. Les solutions de l'équation de Schrödinger sont alors de la forme indiquée par Bloch :

$$\Psi_{\vec{r}} = u_{\vec{k}}(\vec{r}) \exp(2\pi j \vec{k} \cdot \vec{r})$$

où $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ est une fonction ayant la périodicité et les symétries du cristal. On peut se contenter de considérer les vecteurs $\vec{k}$ d'un certain domaine, ou zone de Brillouin. Pour l'antimoniure de césium, de nombreux modèles ont été propo-

sés. Nous avons représenté sur la figure III, 1, le modèle de Miyazawa [III, 1] : les courbes P_1 et P_2 donnent les valeurs extrêmes de l'énergie dans la bande de valence pour deux directions privilégiées du vecteur $\vec{k}$ alors que, dans la bande de conduction, l'énergie la plus basse qui est la même pour ces deux directions, est représentée par la courbe S. Il est à remarquer que la largeur de la bande interdite, voisine de 0,55 eV, est faible par rapport aux valeurs généralement adoptées.

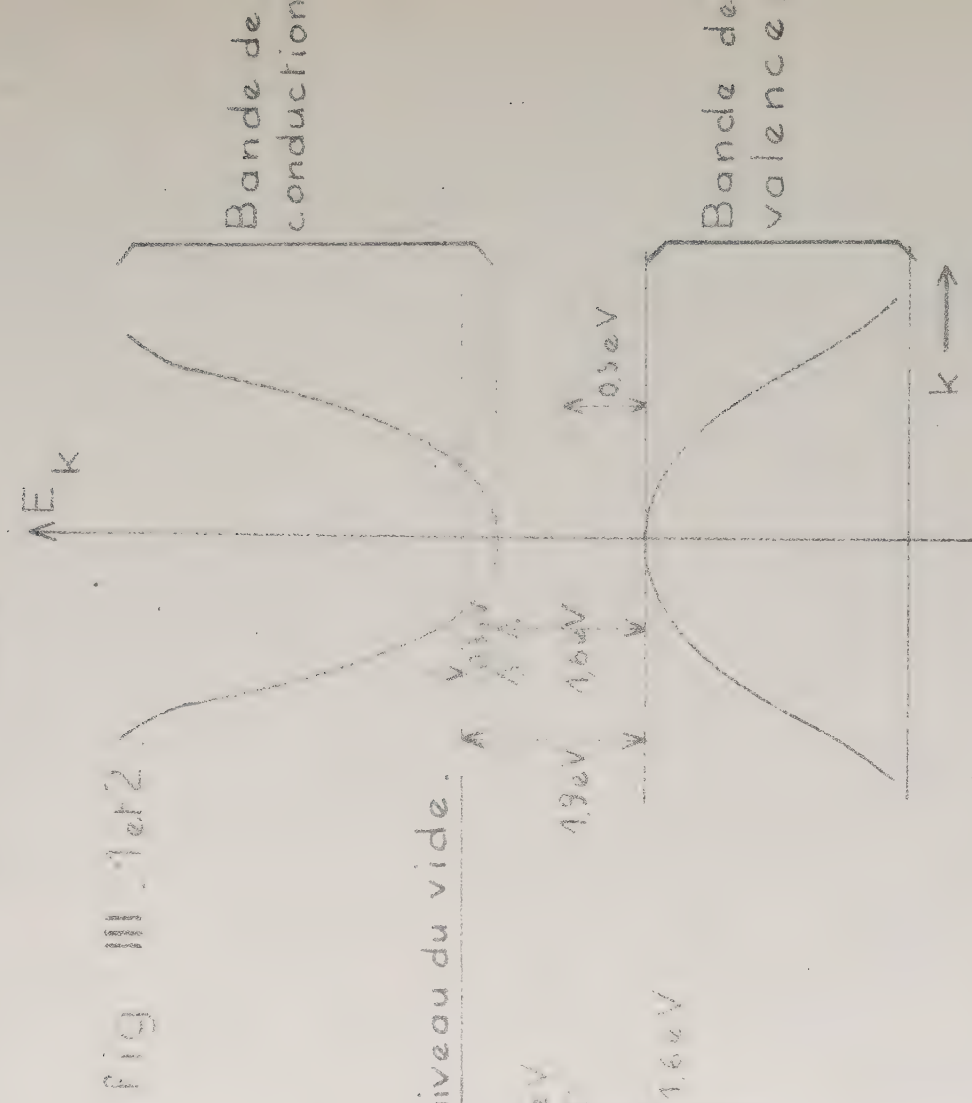
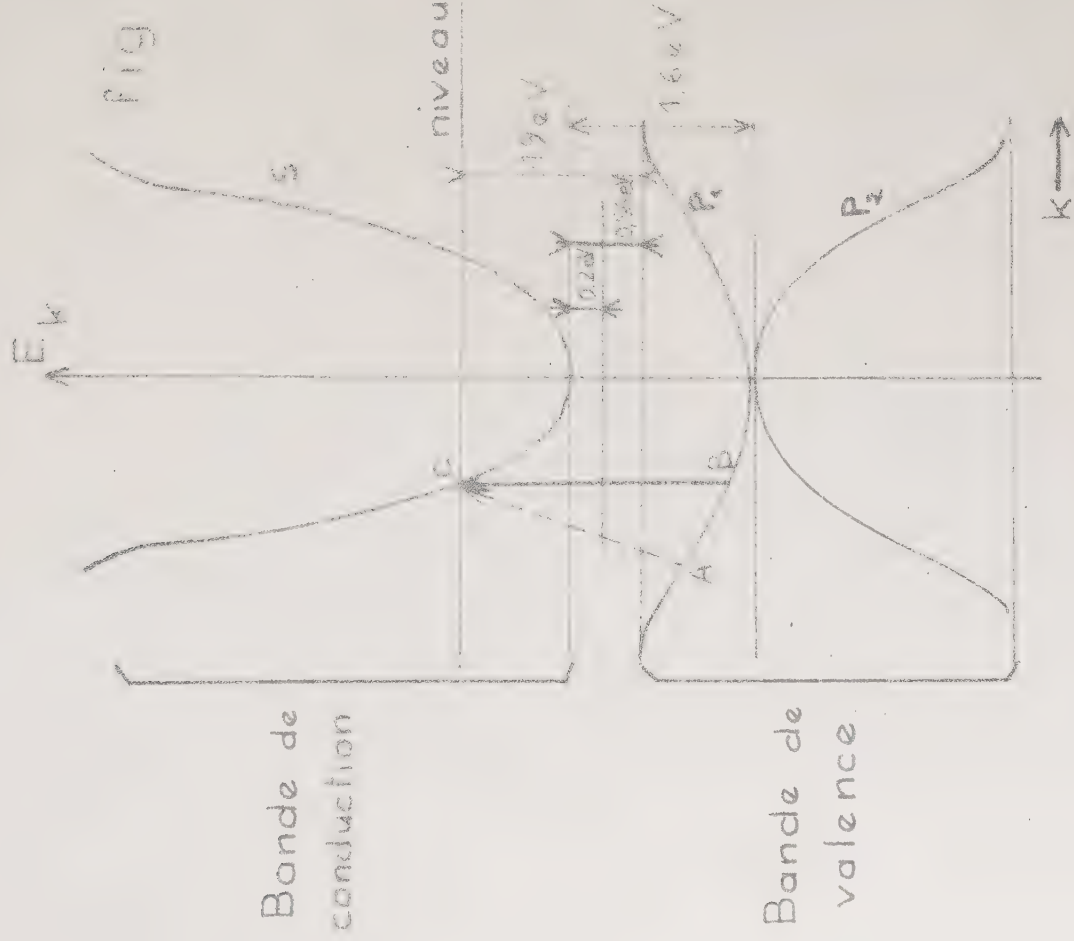
Le modèle proposé par Burton [III, 2] représenté sur la figure III, 2, correspond à une bande interdite de 1,6 eV; cette valeur est en bon accord avec les nombreux travaux portant sur l'absorption optique (N.D. Morgulis, P.G. Borzyak et B.I. Djatlowizkaja [III, 3] ; G. Wallis [III, 4] ou sur la photoconduction (W.E. Spicer [III, 5] ; P.G. Borzyak [III, 6] ; S. Imamura [III, 7]). En ce qui concerne l'affinité électronique, Burton indique 0,3 eV alors que E.A. Taft et H.R. Philipp [III, 8] concluent à une valeur supérieure à 0,4 eV et que W.E. Spicer adopte la valeur 0,45 eV.

II - LE SEUIL PHOTOÉLECTRIQUE

Pour quitter un métal, un électron doit, pour franchir la barrière de potentiel, fournir un certain travail eV_s . Un photon cède à un électron l'énergie $h\nu$; si celle-ci est inférieure à eV_s , l'émission photoélectrique n'a pas lieu car la probabilité pour qu'un électron reçoive l'énergie de plusieurs photons est extrêmement faible. L'émission photoélectrique ne peut avoir lieu que pour des fréquences supérieures au seuil $\nu_0 = eV_s/h$, soient des longueurs d'onde inférieures à $\lambda_0 = hc/eV_s$.

Dans le cas d'un semi-conducteur, le niveau de Fermi

Modèles de Bandes.



est situé dans la bande interdite et l'énergie minimale nécessaire sera $e(V_s + d)$ où d représente la distance du niveau de Fermi au sommet de la bande de valence. Nous aurons donc un seuil bien défini; mais ce résultat n'est valable qu'au zéro absolu et pour un semi-conducteur intrinsèque. En raison du principe d'exclusion de Pauli, il est nécessaire de définir au voisinage de chaque valeur de E une densité $D(E)$ de niveaux permis dont la probabilité d'occupation à une température de $T^\circ K$ est donnée par la fonction de Fermi

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - \mu}{kT}\right)}$$

où μ désigne l'énergie de Fermi. Le nombre d'électrons dont l'énergie est comprise entre E et $E + dE$ sera : $f(E) \cdot D(E) \cdot dE$.

Pour un métal donné, à une température différente du zéro absolu, un certain nombre d'électrons ont des énergies supérieures à celle du niveau de Fermi, leur nombre dépend de la température et le seuil pourra varier en fonction de ce paramètre.

Dans un semi-conducteur intrinsèque, la densité de niveau étant pratiquement nulle au voisinage du niveau de Fermi, les variations de la sensibilité spectrale près du seuil reflètent le profil de la bande de valence et dépendent peu de la température.

Il n'en est pas de même si des niveaux d'impuretés existent dans la bande interdite, conduisant à un déplacement du seuil vers les plus grandes longueurs d'onde, et l'émission photoélectrique peut alors dépendre de la température. La notion de seuil perd donc de son importance et de sa rigueur. On doit se contenter de rechercher un seuil pratique qui sera fonction de l'appareil utilisé pour la mesure du courant photoélectrique. De nombreux travaux, parmi lesquels nous citerons ceux de P.G. Borzyak [III, 6],

T. Sakata [III, 9], A.H. Sommer [III, 10] et S. Imamura [III, 7], ont montré que l'antimoniure de césium Cs_3Sb est normalement un semi-conducteur de type p dont le seuil serait à 1,9 eV, soit 6300 Å. Cependant, de nombreux auteurs indiquent pour longueur d'onde limite 6700 Å; avec les couches que nous avons préparées, il nous a été possible d'obtenir des courants mesurables à 6800 Å. Sur la figure III, 3 sont indiqués quelques-uns de nos résultats expérimentaux au voisinage du seuil pour différentes masses d'antimoine par unité de surface. L'allure de ces courbes suggère une variation exponentielle de la densité électronique avec l'énergie dans la région correspondant au seuil.

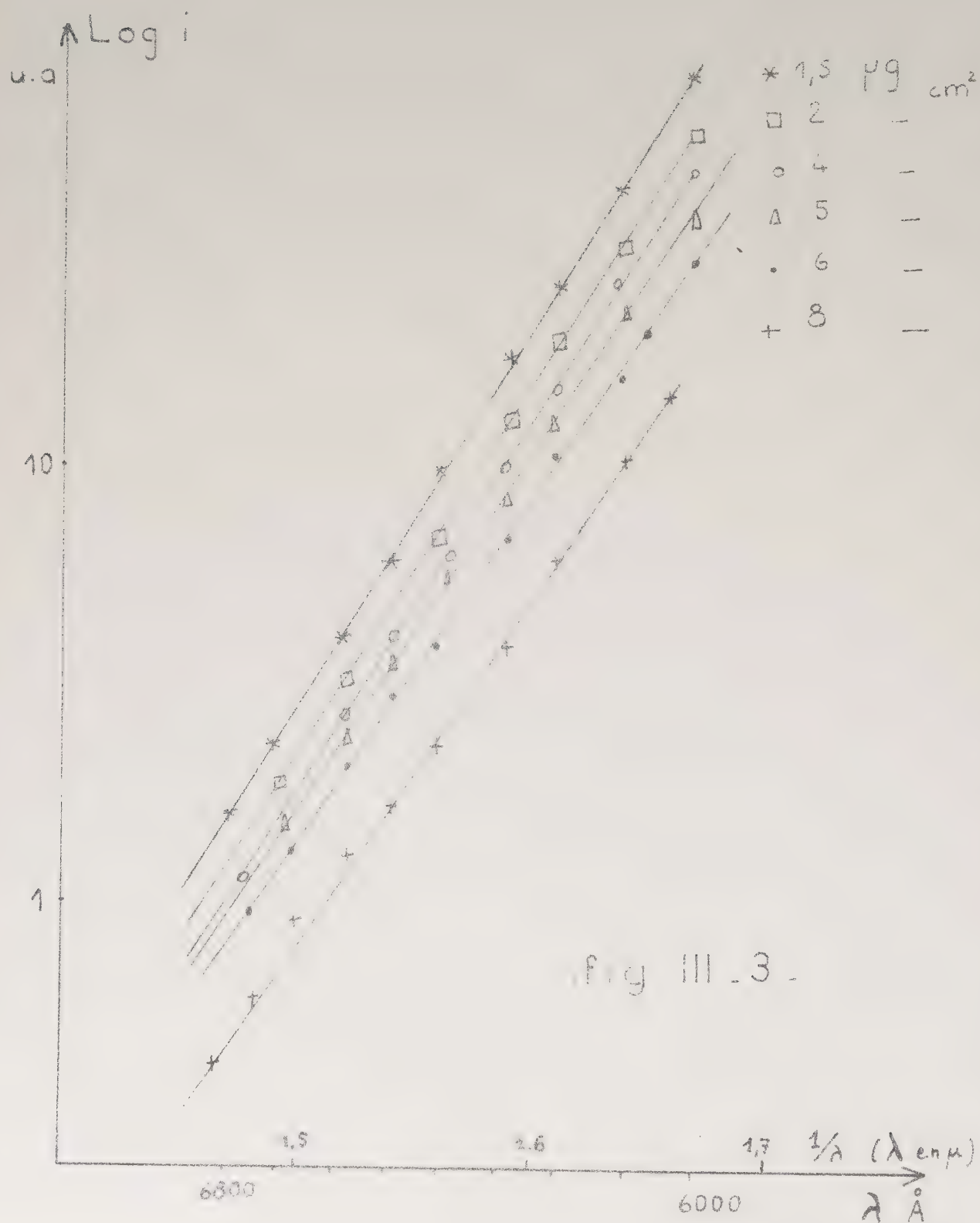
III - EFFET DE SURFACE ET EFFET DE VOLUME

L'interaction photon-électron peut avoir lieu dans la masse du solide ou à sa surface; dans tous les cas nous aurons conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement.

1) Effet de volume

Si un électron est libéré à l'intérieur du cristal, il y décrit une trajectoire sinueuse en perdant progressivement son énergie, et, après avoir atteint la surface, ne pourra s'échapper que si la composante de vitesse v_x perpendiculaire à la surface est telle que l'énergie correspondante $1/2 mv_x^2$ est supérieure ou égale à l'affinité électronique χ . Les conditions d'un rendement photoélectrique élevé sont : une faible affinité électronique, une faible perte d'énergie des photoélectrons dans leur acheminement vers la surface, ce qui conduit à une largeur de la bande interdite grande devant χ , et enfin un coefficient d'absorption de la lumière élevé. L'antimoniure de césium satisfait à ces conditions : la largeur de sa bande interdite

Photoémission du finissage du seuil.



est environ quatre fois plus importante que son affinité électronique; on peut déterminer une profondeur d'échappement des électrons, qui serait de l'ordre de $250 \text{ \AA}$ (J.A. Burton [III, 2]).

En ce qui concerne le coefficient d'absorption optique, Wallis [III, 4] indique une variation entre $1,7 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ à $5800 \text{ \AA}$ et $5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ à $4040 \text{ \AA}$; ajoutons que cette dernière valeur a été adoptée par W.E. Spicer [III, 5] dans certains de ses travaux.

2) Effet de surface

Si l'interaction a lieu à la surface de la couche, l'électron sera éjecté dès sa libération, si le vecteur électrique de l'onde électromagnétique incidente a une composante perpendiculaire à la surface. Pour des surfaces lisses au moins, on a pu mettre en évidence, au voisinage du seuil photoélectrique, l'influence de la direction de polarisation de la lumière. Soulignons qu'avec un modèle électronique tel que celui de Miyakawa (Fig. III, 1) il est possible de trouver deux seuils différents l'un pour l'effet de volume et l'autre pour l'effet de surface : dans l'effet de volume, seules les transitions conservant les directions du vecteur $\vec{k}$ (BC par exemple) sont possibles; par contre la transition oblique AC ne sera permise qu'avec un effet de surface.

IV - PHOTOCONDUCTION

Si un semi-conducteur est irradié par des photons d'énergie $h\nu$ supérieure à la largeur E_0 de la bande interdite, des électrons peuvent passer de la bande de valence à la bande de conduction, créant ainsi des paires électrons-trous. Ce processus, augmentant la densité des porteurs de charges, permet d'observer une augmentation de conductivité.

Un semi-conducteur possédant par unité de volume $n = n_0$ électrons et $p = p_0$ trous, aura, en l'absence d'irradiation, une conductivité donnée par l'expression

$$\sigma_0 = e (n_0 \mu_n + p_0 \mu_p) ,$$

μ_n et μ_p désignant respectivement la mobilité des électrons et celle des trous. Si l'échantillon est irradié, l'augmentation de conductivité sera :

$$\Delta \sigma = eq (\mu_n \tau_n + \mu_p \tau_p)$$

q étant le nombre de paires électrons-trous créées par unité de temps et τ_n et τ_p les durées de vie des électrons et des trous. Suivant la nature du semi-conducteur considéré l'un des deux termes $\mu_n \tau_n$ ou $\mu_p \tau_p$ pourra être prépondérant. La présence d'impuretés ou de défauts dans le réseau donnant lieu à des niveaux donneurs ou accepteurs dans la bande interdite, des photons d'énergie $h\nu < E_0$ pourront produire une augmentation de conductivité en excitant les électrons des niveaux donneurs ou en remplissant les niveaux accepteurs.

Les mobilités des porteurs sont, en général, assez caractéristiques du semi-conducteur considéré. Par contre, les durées de vie sont très largement influencées par la présence de pièges; les niveaux d'énergie relatifs à ces derniers étant plus éloignés des bandes permises que les niveaux donneurs ou accepteurs, de nombreux processus sont alors possibles et l'interprétation des résultats expérimentaux devient très difficile.

Les mesures sont d'ailleurs fort délicates en couches minces, car la photoconduction est perturbée par la photoémission.

S. Imamura [III, 7] a étudié la photoconductivité de l'antimoniure de césium, en couches suffisamment épaisses (1 à 2 μ) pour que la plus grande partie de la lumière soit

absorbée loin de la surface. Pour nos couches, beaucoup plus minces, il aurait fallu, comme Spicer [III, 5], pouvoir travailler dans le proche infra-rouge.

V - PHOTOEMISSION

1) Sensibilité spectrale

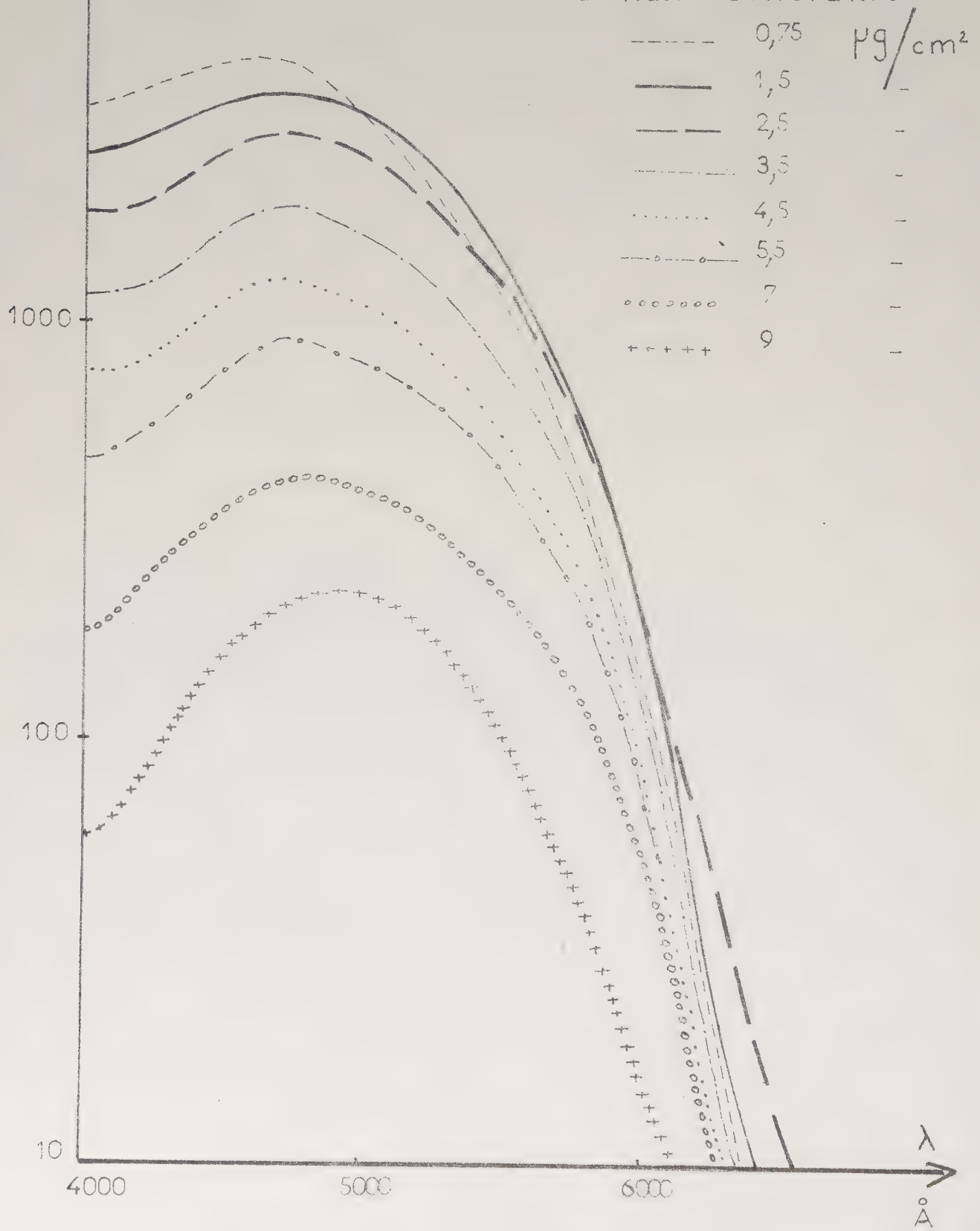
Les différences observées dans les courbes de sensibilité spectrale données par divers auteurs ont été attribuées par J.B. Birks et I.H. Munro [III, 11], à des différences d'épaisseur des couches photoémissives étudiées. Nous avons indiqué sur la figure III, 4 nos principaux résultats expérimentaux relatifs au courant de photoémission en fonction de la longueur d'onde, pour différentes épaisseurs. Indiquons que ces courbes diffèrent légèrement de la réponse spectrale dénommée S 11 en raison de la nature du verre employé. Le maximum de sensibilité varie légèrement avec l'épaisseur de la couche étudiée, épaisseur exprimée par la masse d'antimoine évaporée par unité de surface (fig. III, 5); ce résultat peut être attribué à des variations de l'absorption. Nous avons représenté sur la figure III, 6, deux courbes de transparence obtenues pour deux épaisseurs différentes. Les faibles longueurs d'onde, fortement absorbées, donnent des photoélectrons qui auraient un parcours important à effectuer dans les couches épaisses avant de pouvoir être émis dans le vide, et la courbe de sensibilité spectrale sera alors déplacée vers le rouge.

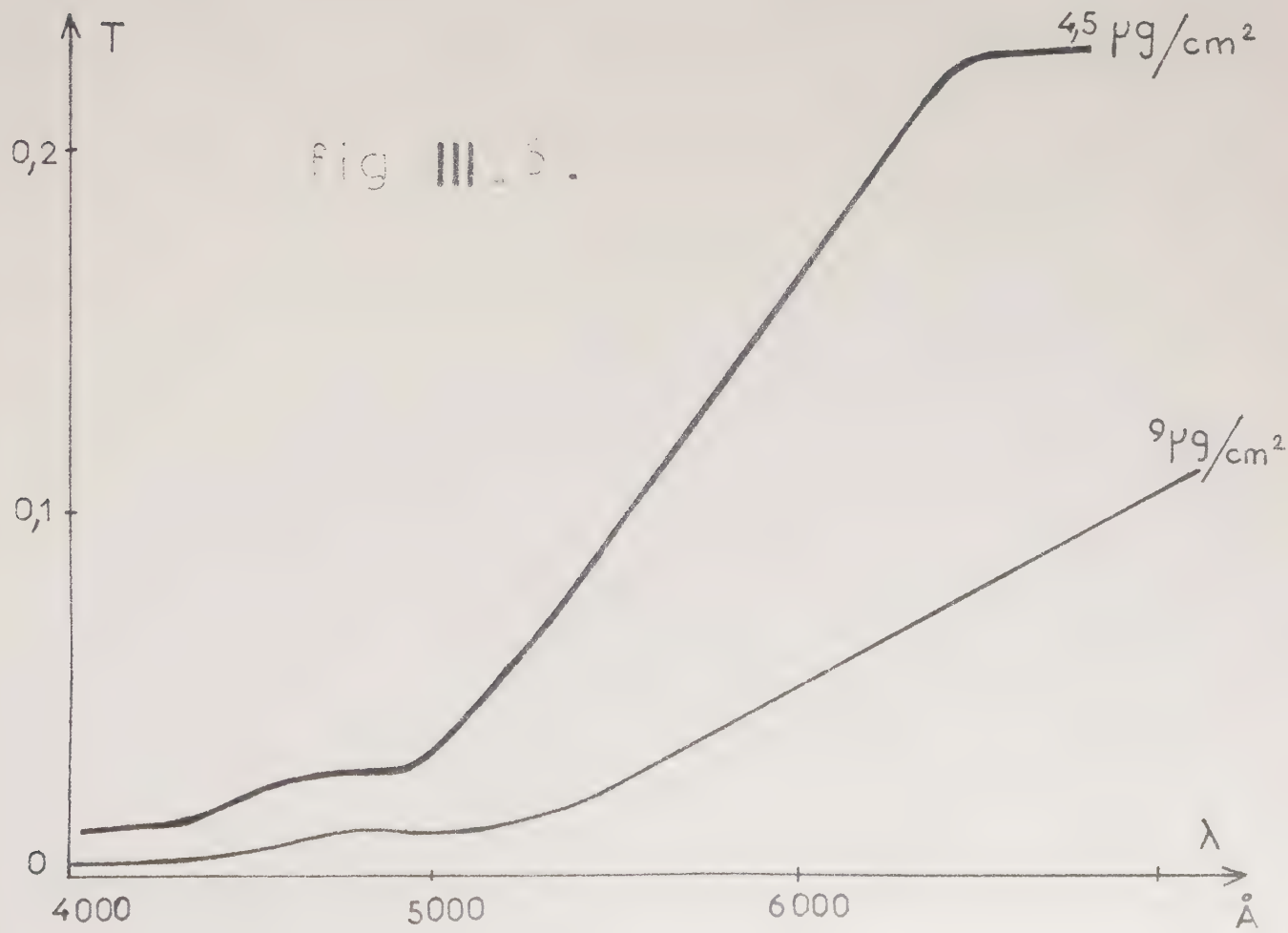
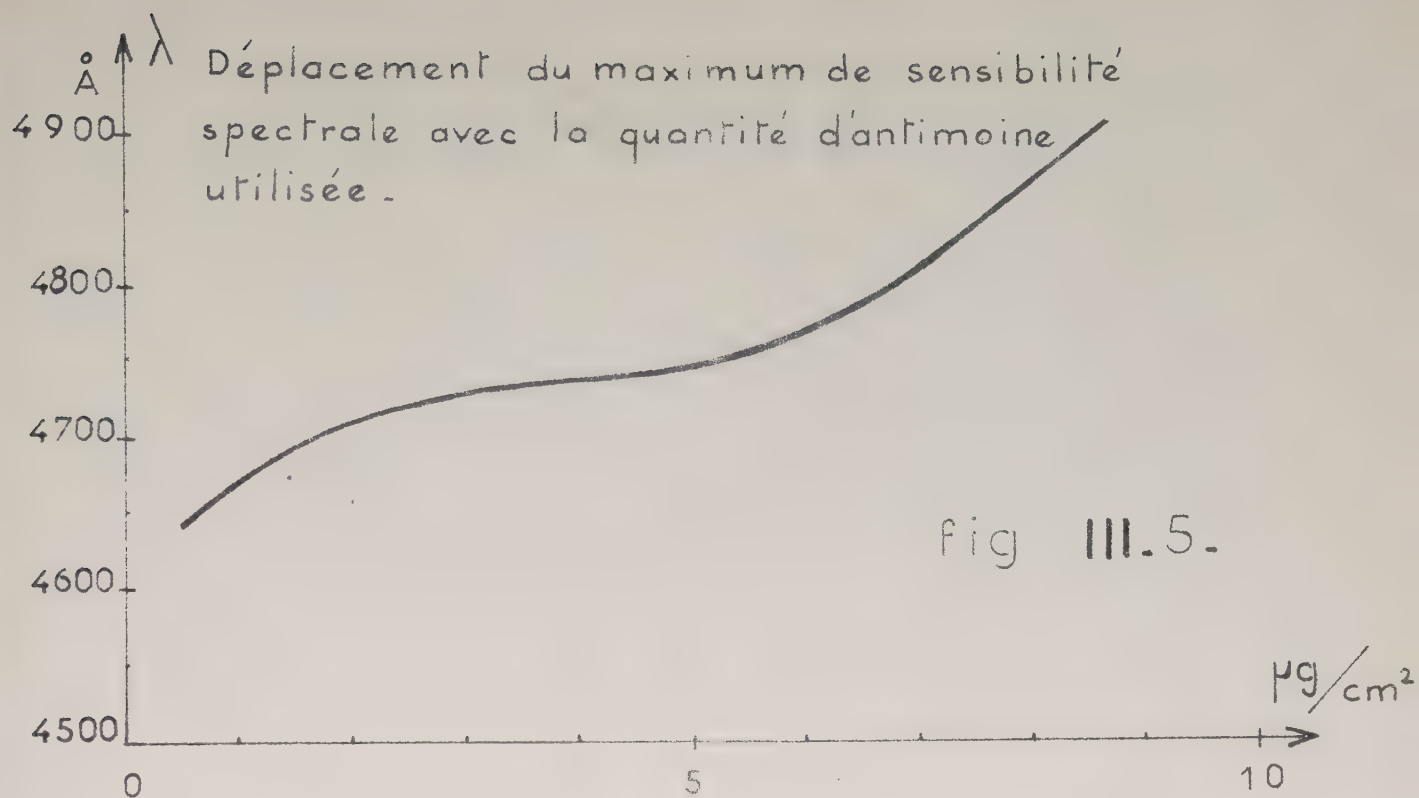
Ces mesures de sensibilité spectrale ont été également effectuées à l'aide d'un flux lumineux haché périodiquement. Les résultats obtenus (fig. III, 7) sont en assez bon accord avec les résultats précédents. Les faibles différences obtenues pourraient être attribuées à un échauffement local de la couche soumise à un flux lumineux permanent.

Photoémission.

fig III.4.

sensibilité spectrale
à flux constant.





Photoémission .

—— sensibilité spectrale pour un flux lumineux à 300 Hz.

----- courbe correspondante avec un flux lumineux continu.

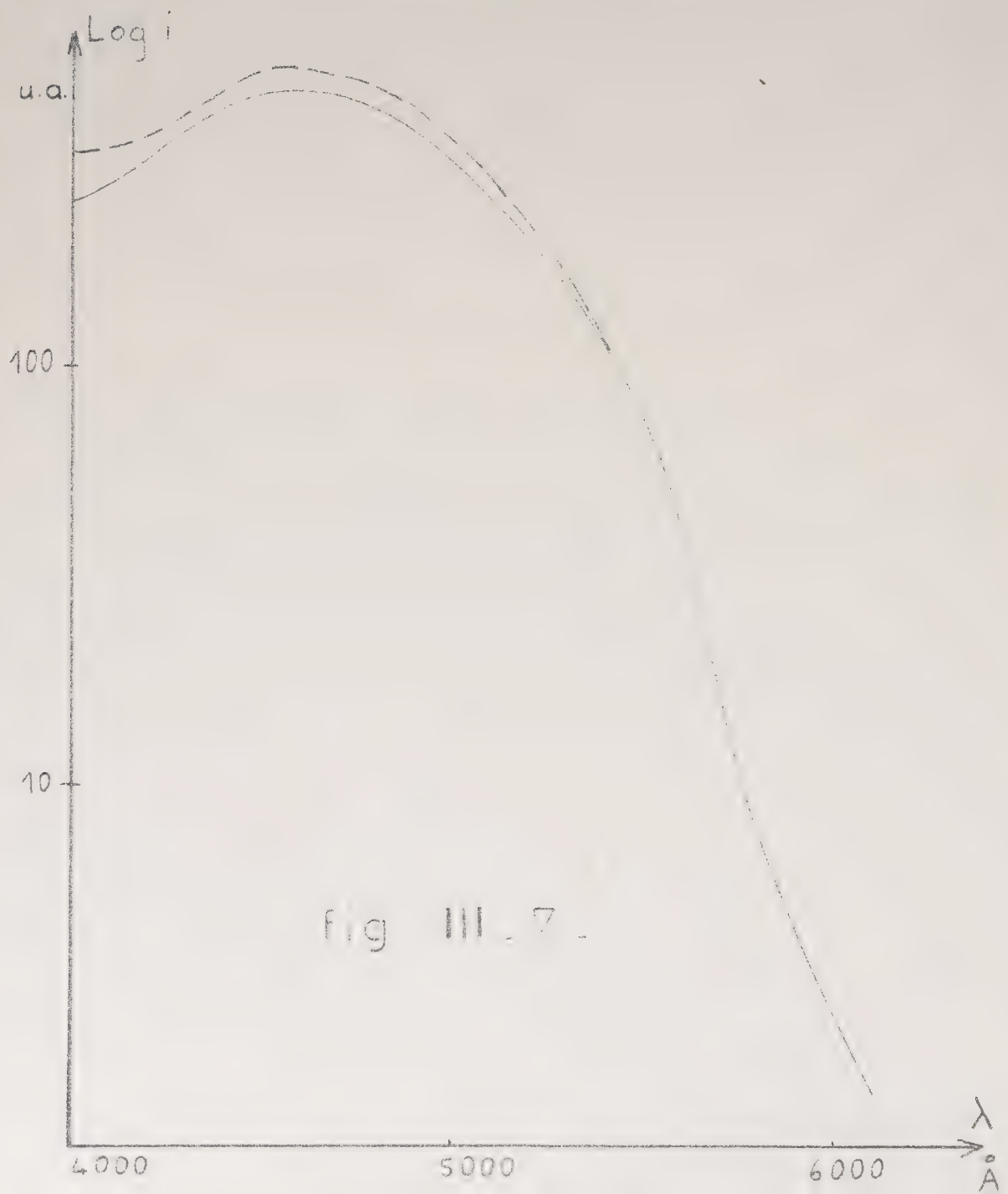


fig III - 7 -

2) Variation de la photoémission avec l'épaisseur

Considérons une couche d'antimoniure de césium, d'épaisseur e (fig. III, 8); soit I_0 l'intensité du flux lumineux incident après la traversée du verre-support, et soit I celle relative au plan d'abscisse x , dans la couche, en adoptant pour origine des abscisses le plan de la surface émissive côté vide. Le coefficient d'absorption α de la lumière peut être considéré comme la somme de deux termes α_1 et α_2 (fig. III, 9), α_1 correspondant à l'affinité électronique et α_2 à l'énergie excédentaire du photon incident. L'intensité I du flux sera donnée par l'expression $I = I_0 \exp [-\alpha (e - x)]$.

Dans une couche d'abscisse x et d'épaisseur dx , le nombre de photoélectrons d'énergie suffisante pour être susceptibles de sortir dans le vide est proportionnel à

$\alpha_2 I dx$. En admettant pour les électrons une absorption également exponentielle de coefficient β , la contribution au courant dans le vide de la couche élémentaire considérée sera

$$\begin{aligned} di &= C \alpha_2 I \exp (-\beta x) dx \\ &= C \alpha_2 I_0 \exp [-\alpha (e - x)] \exp (-\beta x) dx, \text{ d'où} \\ i &= C \alpha_2 I_0 e^{-\alpha e} \int_e^0 \exp [-(\beta - \alpha) x] dx \end{aligned}$$

Les paramètres C , α_2 et β ne dépendant que de $h\nu$, posons :

$$\frac{C \alpha_2 I_0}{\beta - \alpha} = f(h\nu);$$

l'expression finale du courant sera :

$$i = f(h\nu) [\exp (-\beta e) - \exp (-\alpha e)].$$

fig III.8.

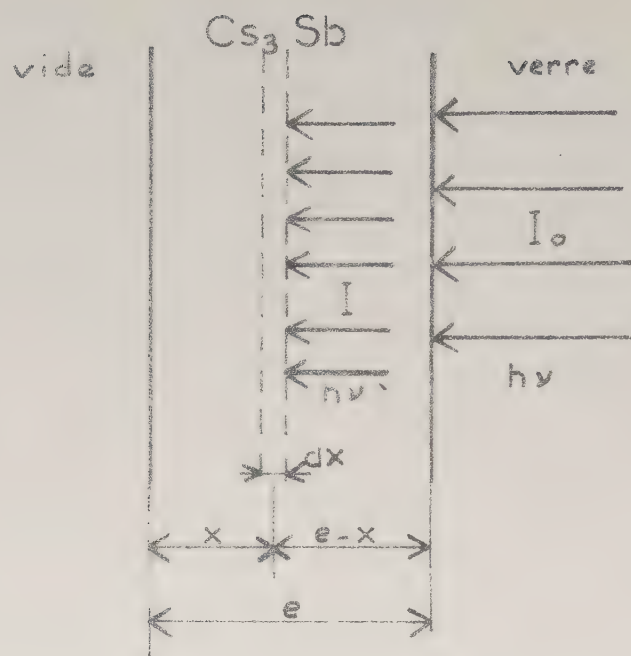
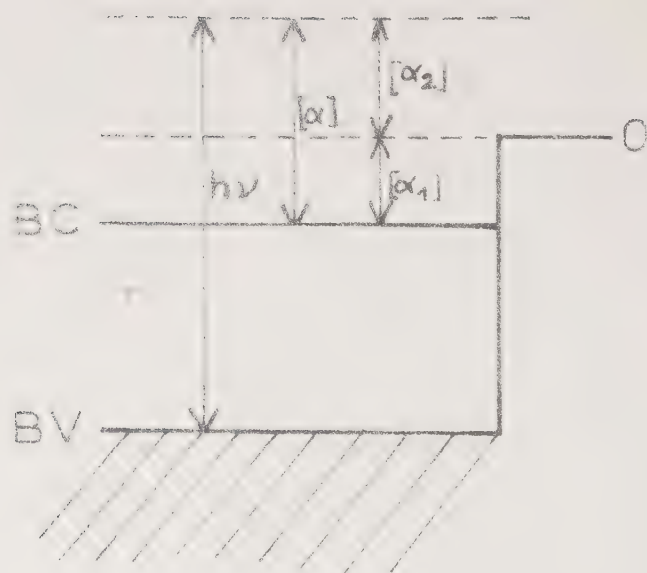


fig III.9.



Les coefficients α et β sont du même ordre de grandeur. Cependant nos résultats expérimentaux représentés sur la figure III, 10 attribueraient un rôle prépondérant au coefficient β pour les grandes épaisseurs.

Deux possibilités s'offraient à nous pour effectuer de telles mesures : soit réaliser un certain nombre de tubes avec des couches d'épaisseurs différentes mais uniformes, soit réaliser des couches "en coin". Ces méthodes présentent toutes deux des inconvénients : avec la cellule à épaisseur variable nous n'avions vraisemblablement pas la quantité optimale de césium pour toutes les épaisseurs, alors que la première technique nous aurait conduit à comparer des couches homogènes mais préparées dans des conditions qui ne pouvaient être rigoureusement les mêmes.

Ajoutons que le calcul précédemment développé n'est qu'approché; il néglige de nombreux phénomènes tels que, par exemple, les phénomènes d'interférences. Les points expérimentaux obtenus se situent en effet sur des courbes ondulant de part et d'autre de courbes moyennes, ce qui suggère un terme correctif sinusoïdal pour l'absorption. Ce résultat est à rapprocher de celui qui a été obtenu pour l'absorption optique par G. Wallis [III, 4] et que nous avons reproduit sur la figure III, 11.

VI - REPARTITION ENERGETIQUE DES PHOTOELECTRONS AU VOISINAGE DU SEUIL

Pour obtenir cette répartition énergétique des électrons, nous avons utilisé la méthode des potentiels retardateurs. Dans le cas d'un semi-conducteur intrinsèque, trois cas sont possibles (fig. III, 12, a, b, c) :

- Le travail de sortie de l'anode est égal à celui de la photocathode. L'énergie minimale $h\nu_0$ pour extraire un

Variation du courant de photoémission
en fonction de la quantité d'antimoine par
unité de surface.

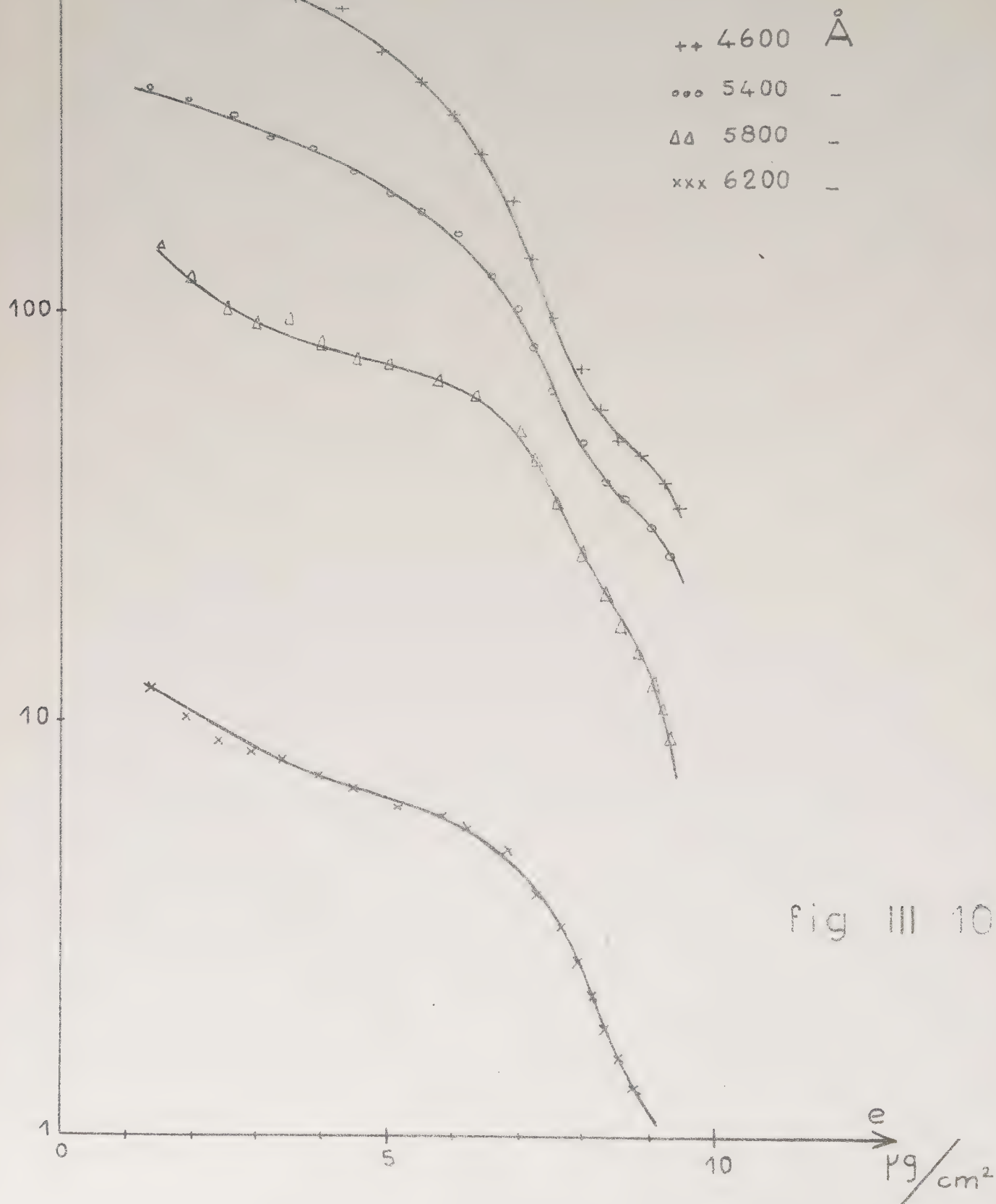
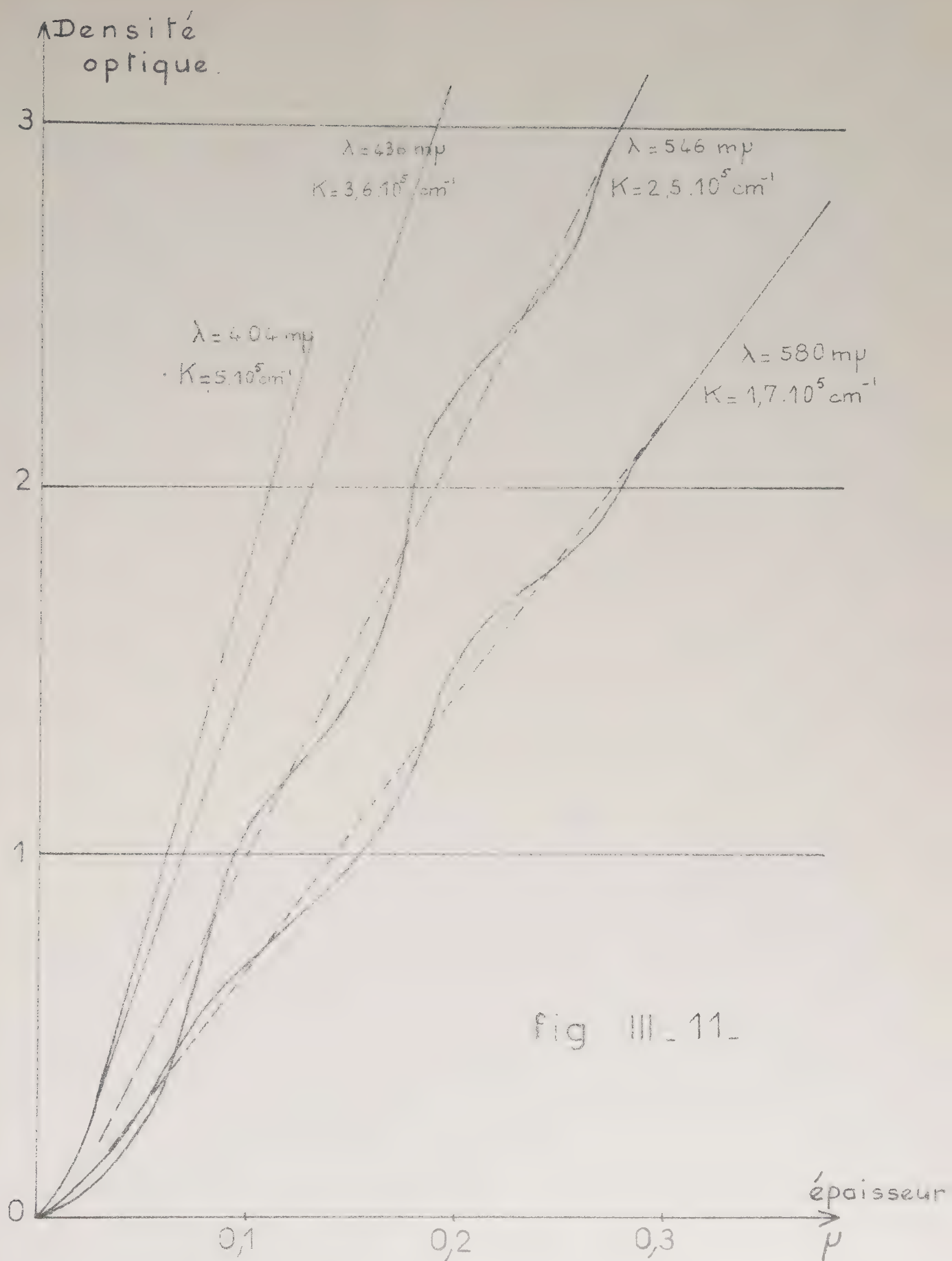


fig III 10



12 a

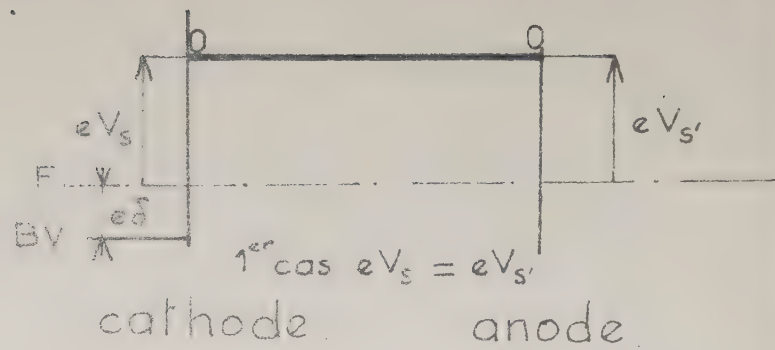
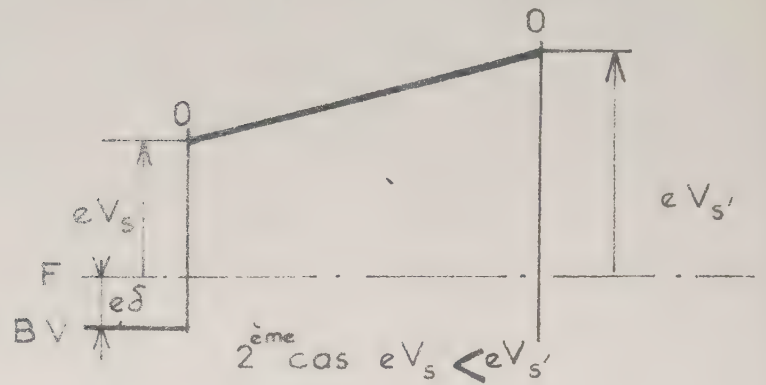
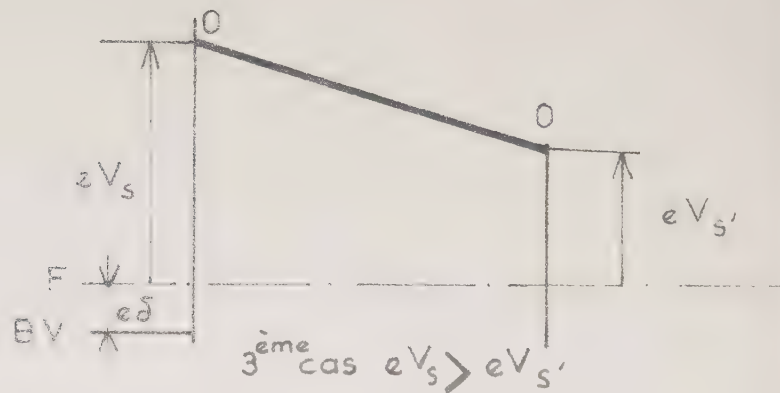


fig III 12 b



12 c



Energie potentielle d'un électron entre l'anode et la photocathode.

F niveau de Fermi

BV sommet de la bande de valence pour la photocathode.

eV_s travail de sortie pour la photocathode.

$e\delta$ distance entre le niveau de Fermi et la bande de valence.

$eV_{s'}$ travail de sortie de l'anode.

électron du semi-conducteur sera égale à $(ed + eV_s)$, ed étant la distance entre le niveau de Fermi et le sommet de la bande de valence et eV_s le travail de sortie. La courbe obtenue en portant le potentiel retardateur U en fonction de l'énergie $h\nu$ des photons incidents sera une droite coupant l'axe des abscisses au point $h\nu_0$, seuil d'émission.

- Le travail de sortie de l'anode est supérieur à celui de la photocathode. Dans ces conditions l'énergie minimale à fournir à un électron pour qu'il puisse atteindre l'anode est égale à $(ed + eV_{s'})$ ($eV_{s'}$ étant le travail de sortie de l'anode). La droite obtenue coupera donc l'axe des abscisses au point $h\nu'_0$, qui sera le seuil de la cellule utilisée et non celui de la photocathode.

- Le travail de sortie de l'anode est inférieur à celui de la photocathode. L'énergie minimale à fournir aux électrons sera $(ed + eV_s)$, expression caractéristique de la photocathode. La tension U appliquée n'aura pas d'action sur le courant émis tant que eU reste inférieure à $(eV_s - eV_{s'})$.

Nous avons résumé cette discussion en traçant sur la figure III, 13 les trois types de courbes possibles. Dans la réalisation de couches photoémisives à épaisseur variable, nous avons été conduit à adopter, ainsi que nous l'avons précédemment indiqué, une certaine géométrie pour nos tubes expérimentaux. Bien que cette disposition ne soit pas la meilleure pour l'étude de la distribution énergétique des électrons émis, nous avons pu vérifier la théorie précédente. Nous avons obtenu un réseau de droites parallèles (fig. III, 14) pour les différentes épaisseurs choisies, mais la valeur de la constante de Planck que l'on peut en déduire n'est qu'approchée ($5 \cdot 10^{-34}$ J. s au lieu de $6,6 \cdot 10^{-34}$).

Il semble que l'on soit en présence du troisième cas précédemment envisagé, ce qui permet de fixer le seuil vers

Potentiels retardateurs

en fonction de l'énergie des
photons incidents pour les
3 cas envisagés.

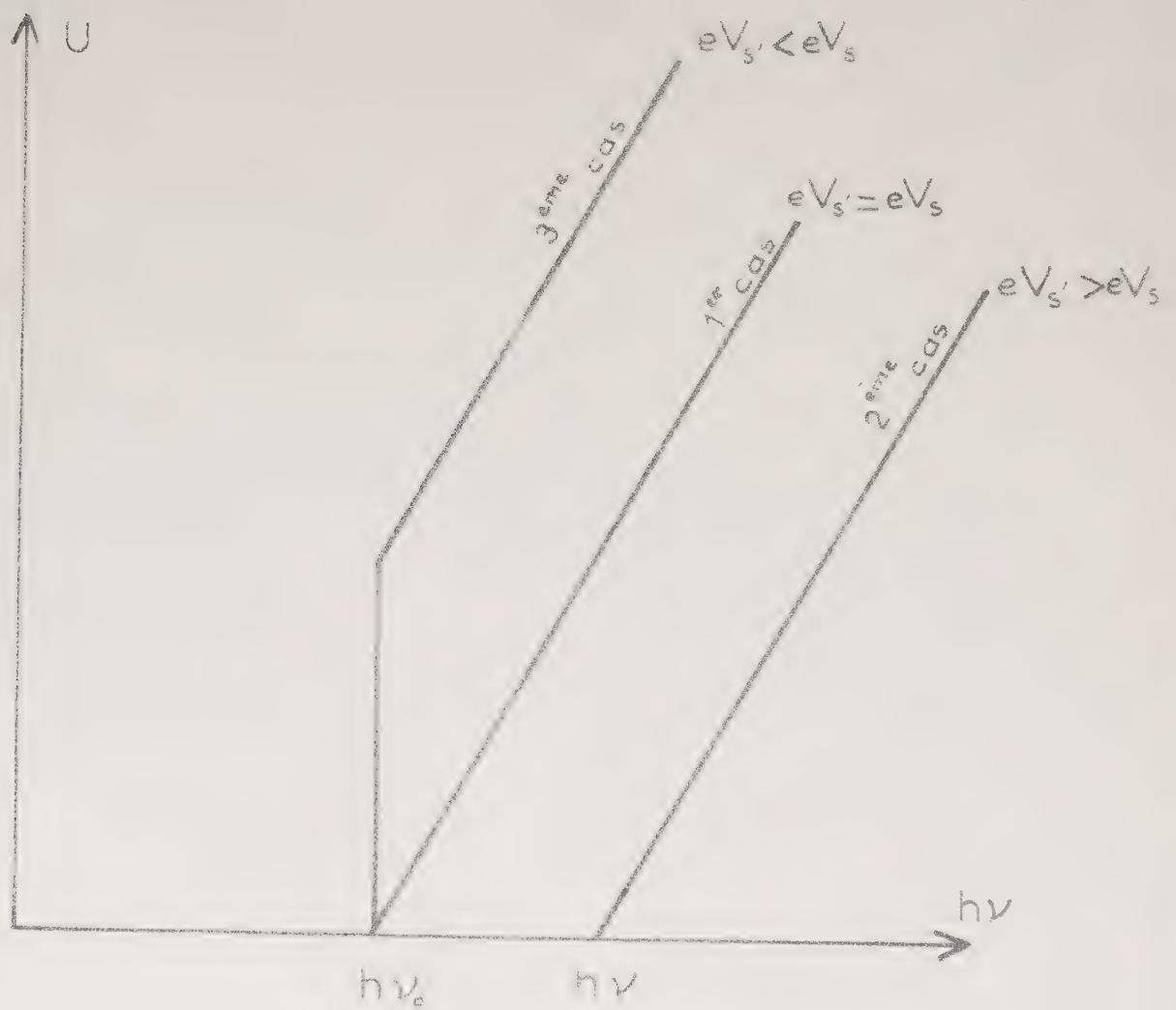
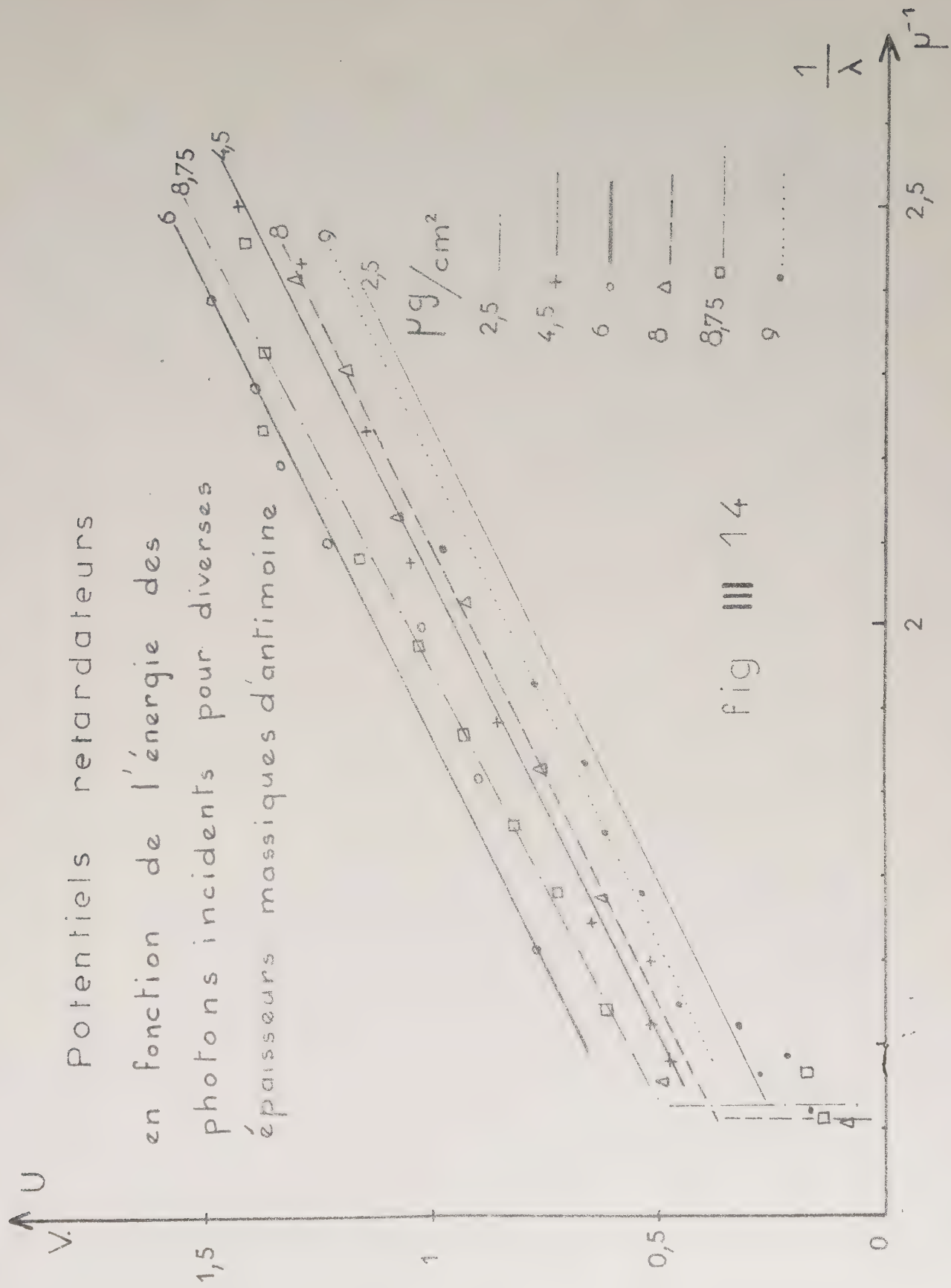


Fig. III - 13.



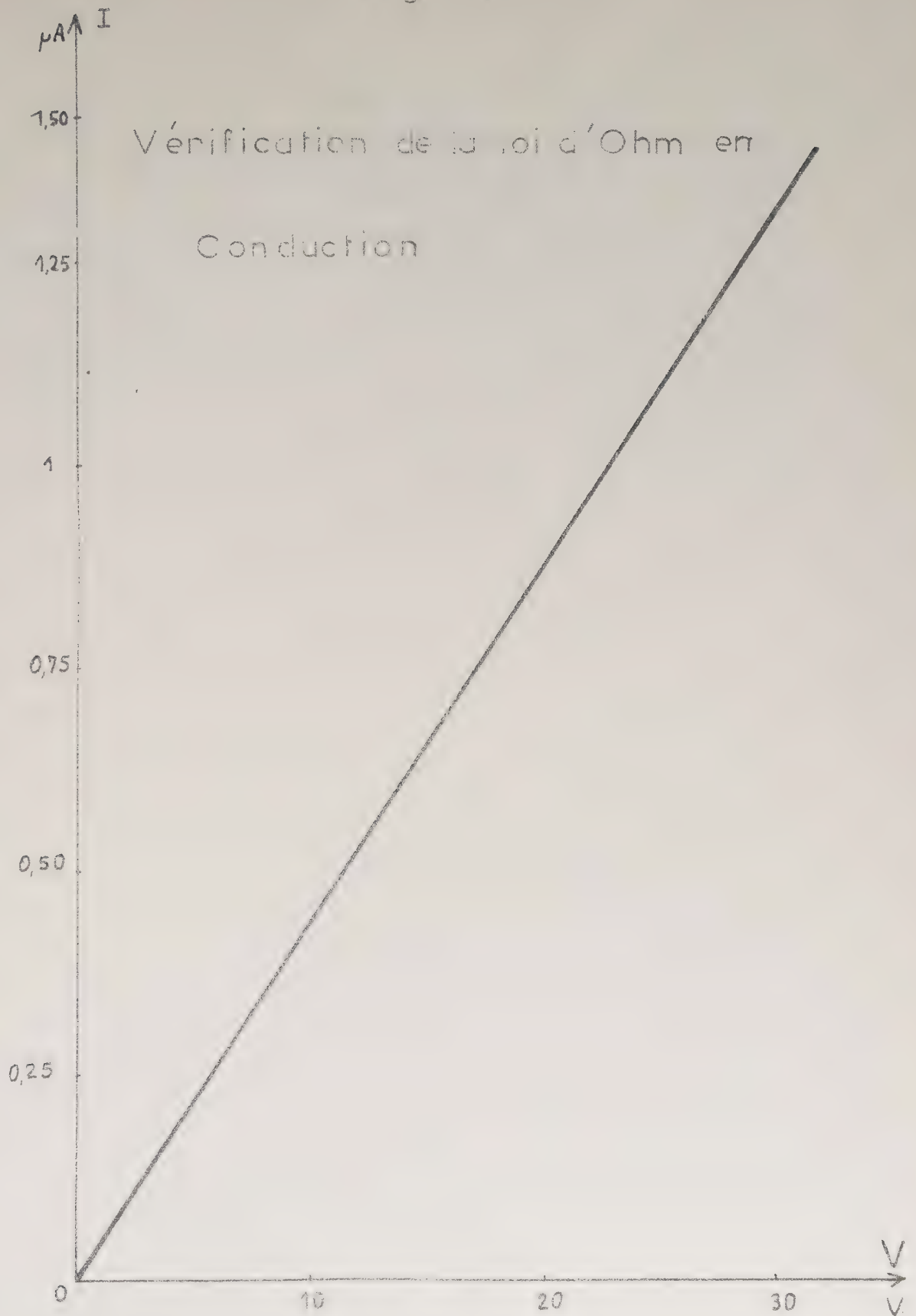
6800 Å. Il peut paraître difficile d'admettre que le travail de sortie de l'anode soit inférieur à celui de la photocathode; cependant, l'anneau anodique ayant servi d'évaporateur d'antimoine, il est raisonnable d'admettre l'existence d'un film mince d'antimoine résiduel qui, se combinant au césium lors de son introduction, a donné une couche photoémissive sur le molybdène support. Le travail de sortie de l'anode pourrait être de ce fait du même ordre ou même inférieur à celui de la photocathode.

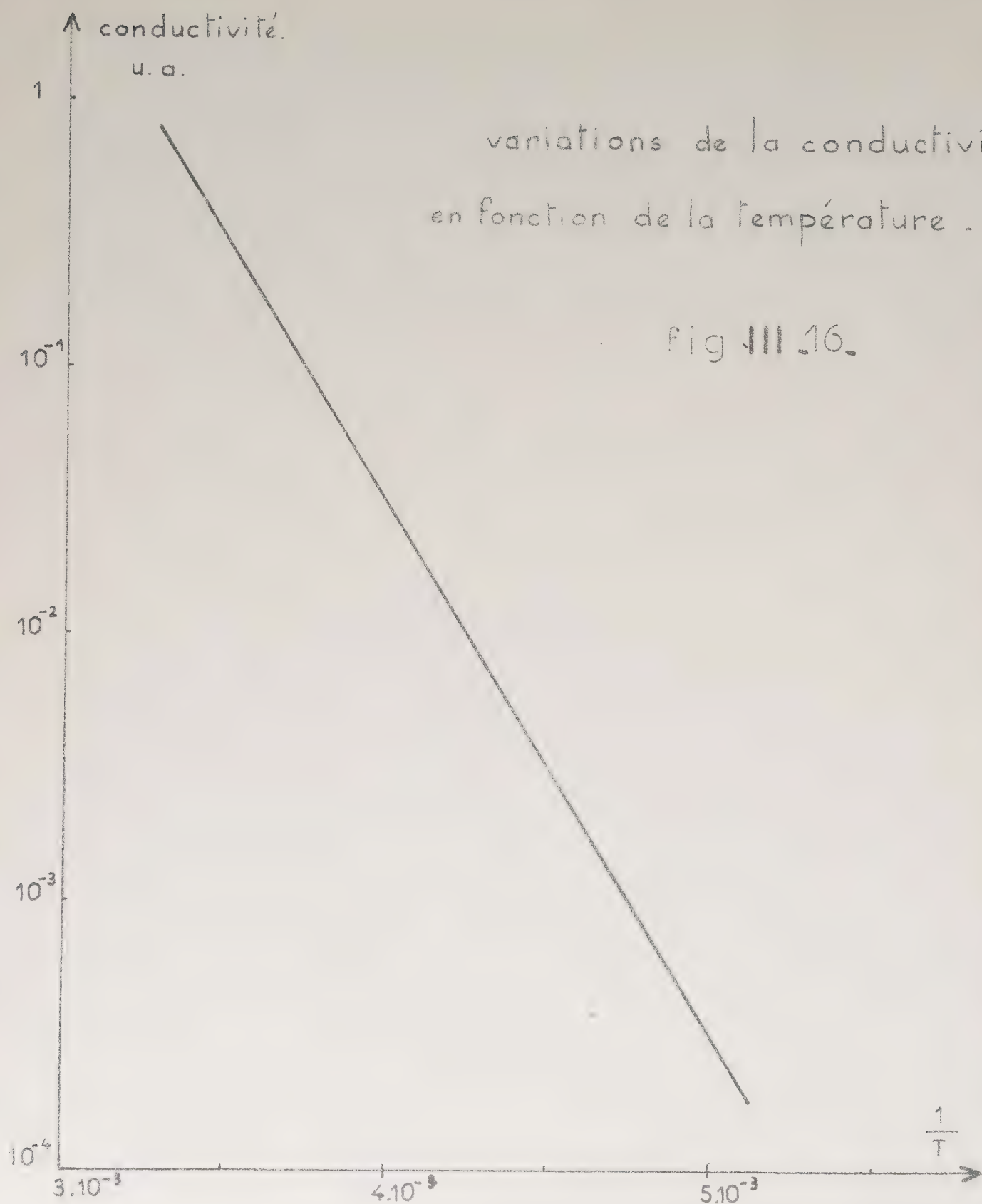
VII - PROPRIETES ELECTRIQUES

Nous avons vérifié (fig. III, 15) que, au moins pour de faibles valeurs de la tension appliquée, la conduction de nos couches suit parfaitement la loi d'Ohm à la température ambiante.

En abaissant la température jusque vers -100°C , cette conductivité décroît suivant une loi exponentielle en fonction de $1/T$ (fig. III, 16). Dans la gamme des températures utilisées, il s'agirait de conductivité intrinsèque. L'énergie d'activation thermique déduite de ces résultats est sensiblement égale à 0,4 eV. K. Miyake [III, 12] admet des valeurs comprises entre 0,57 et 0,77 eV alors que S. Imamura [III, 7] indique des valeurs comprises entre 0,4 et 0,15 eV, et G. Wallis [III, 5] des valeurs comprises entre 0,4 et 0,025 eV.

fig III.15 .





CHAPITRE IV

DOSAGE DU CESIUM

INTRODUCTION

I - CHOIX DU RADIOELEMENT

- 1) Utilisation du césium 137
- 2) Utilisation du césium 134

II - RAPPELS THEORIQUES

- 1) Détection du rayonnement gamma
- 2) Mode de comptage
- 3) Utilisation d'écrans ou de diaphragmes de plomb

III - TECHNIQUE DE MESURE

- 1) Emploi d'une source étalon ponctuelle
- 2) Emploi de sources étalons étendues à géométrie cylindrique
 - Technique expérimentale
 - Incertitude
 - Justification de la méthode utilisée
- 3) Méthode utilisant le déplacement de sources
- 4) Utilisation de deux détecteurs

IV - MESURE DES VARIATIONS DE LA QUANTITE DE CESIUM AU COURS DES TRAITEMENTS

CONCLUSION

INTRODUCTION :

Il nous a paru important de connaître la quantité de césium intervenant dans la couche sensible, car la totalité du césium introduit dans le tube pour obtenir une émission photoélectrique maximale n'est pas utilisée.

Les renseignements obtenus en cassant le tube ne sont pas suffisants, car d'après A. Lallemand et M. Duchene [IV, 1], il y a une évolution probable de la composition de la couche photoémissive au cours de la vie du tube et des traitements subis. Une méthode permettant de suivre cette évolution dans le tube lui-même est donc d'un grand intérêt : pour cela, nous avons utilisé du césium radioactif. Les mesures sont rendues difficiles en raison de la géométrie de nos cellules expérimentales et de la présence de césium sur les parois internes et les électrodes : ce césium donne en quelque sorte des sources de rayonnement parasites au voisinage de la source à mesurer, qui est la photocathode.

Après avoir motivé le choix de notre radioélément, nous rappellerons très succinctement le mode de détection du rayonnement utilisé, et les processus d'interaction de ce rayonnement avec la matière. Nous présenterons ensuite les différentes méthodes envisagées et les résultats expérimentaux obtenus.

I - CHOIX DU RADIOELEMENT

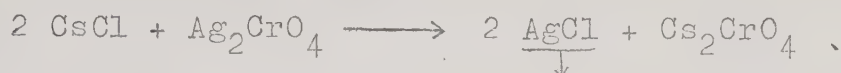
Les rayonnements β et γ pouvaient être utilisés, mais pour des raisons d'ordre expérimental, nous avons employé le rayonnement γ des traceurs. Il était possible d'envisager l'emploi soit du ^{137}Cs , soit du ^{134}Cs .

1) Utilisation du césium 137

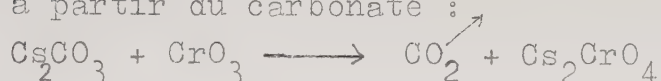
L'emploi de ce radioélément paraît tout indiqué, son

rayonnement monoénergétique (661 KeV) étant émis avec une période de 29,68 années. N'ayant pu nous le procurer qu'à l'état de sulfate, nous avons dû lui faire subir préalablement une transformation chimique conduisant à un chromate. Ce dernier, facilement réduit par le silicium, donne le césium métallique que l'on introduira dans le tube expérimental. On pouvait alors envisager les réactions suivantes :

- à partir du chlorure :



- à partir du carbonate :



- à partir de l'équilibre :



Les caractéristiques des divers composés en présence sont données dans le tableau I; en outre, il faut réaliser les conditions expérimentales suivantes :

- Traiter des quantités très faibles.
- Eviter l'introduction d'ions étrangers et la perte de composé radioactif.

Ceci élimine les deux premiers modes de préparation : pour transformer du sulfate de césium en chlorure ou en carbonate, il faut opérer, au moins, une filtration supplémentaire, et l'introduction d'ions étrangers est difficile à éviter; en outre, une cristallisation fractionnée est nécessaire.

L'équilibre entre sulfate et chromate serait assez tentant, mais la différence de solubilité en milieu neutre est trop faible. En milieu acide le chromate de baryum est soluble et la précipitation du sulfate de baryum totale. Après filtration, il resterait un excès de chromate de baryum en solution, du chlorure si l'acide utilisé est de l'acide chlorhydrique et le chromate de césium. En milieu alcalin

Tableau I

Composés	BaCrO ₄	Cs ₂ SO ₄	BaSO ₄	Cs ₂ CrO ₄
Solubilité dans H ₂ O	340.10 ⁻⁶ g/l	1,57 g/100 cm ³	222.10 ⁻⁶ g/l	71,4 g/100 cm ³
Solubilité dans H ⁺	soluble	soluble	insoluble	soluble
Solubilité dans NH ₄ OH	insoluble	soluble	insoluble	soluble
Masse molaire	253,37	361,89	233,43	381,83

il ne resterait en solution que du chromate de césium, du chlorure de césium et du chlorure d'ammonium. Ces derniers, solubles dans l'alcool pourraient être éliminés, mais le chromate, oxydant l'alcool en aldéhyde, se transformera en sel chromique vert. Ce procédé donne lieu cependant à une variante valable : le chromate de baryum est légèrement soluble dans l'acide sulfurique, ce qui a l'avantage de ne pas introduire d'ions étrangers et conduira au procédé suivant :

La quantité de sulfate de césium en solution à traiter est de 1 cm^3 , mais nous ne connaissons pas la quantité exacte de sel dissoute, qui pourrait être de 1,67 g; nous la supposons comprise entre 100 et 200 mg. Après addition de quelques grammes de chromate de baryum et $0,1 \text{ cm}^3$ d'acide sulfurique N/10, on laisse la solution s'homogénéiser avant de filtrer. Le filtrat contiendra un peu de sulfate de baryum en solution, du chromate de césium et de l'acide chromique. En ajoutant $0,3 \text{ cm}^3$ d'ammoniaque N/10, la solution jaunit. Une nouvelle filtration ne laissera en solution que Cs_2CrO_4 et $(\text{NH}_4)_2\text{CrO}_4$. Par concentration à sec une grande partie de $(\text{NH}_4)_2\text{CrO}_4$ est détruite et Cs_2CrO_4 cristallise en aiguilles légèrement rouges (ce qui est dû vraisemblablement à la présence d'un peu de bichromate $\text{Cs}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$). Les traces résiduelles de $(\text{NH}_4)_2\text{CrO}_4$ seront décomposées lors du dégazage du mélange de silicium et de chromate de césium. En outre, la présence du bichromate résiduel a un effet négligeable; en effet, un résidu de 5 % de bichromate ne donnerait qu'une erreur inférieure à 1 %.

Malheureusement, nous avons constaté que le chromate ainsi obtenu est moins facilement réduit par le silicium que celui que l'on utilise habituellement. Ceci nous a conduit à abandonner l'emploi du césium 137 au profit du césium 134 avec lequel de plus grandes activités spécifiques

pouvaient être obtenues.

2) Utilisation du césium 134

Afin d'éviter toute manipulation chimique, nous avons irradié du chromate de césium par bombardement neutronique. Dans ces conditions le césium naturel, constitué à 100 % de ^{133}Cs donnera le ^{134}Cs , de période 2,2 années. La figure IV, 1 donne les valeurs récentes [IV, 2] des niveaux excités du ^{134}Ba obtenu par émission β^- du ^{134}Cs et les intensités relatives des rayonnements gamma. Dans nos mesures nous avons le plus souvent utilisé le rayonnement de 0,8 MeV.

Le chromate de césium placé dans un flux ϕ variant suivant les cas de 10^{12} à 10^{13} neutrons par centimètre carré et par seconde, acquiert une activité spécifique A, en microcuries par gramme de chromate, donnée par la relation :

$$A = \frac{2N\phi\sigma}{3,7 \cdot 10^4 M} (1 - e^{-0,69 t/T}) \approx 0,69 \frac{2N\phi\sigma}{3,7 \cdot 10^4 M} \cdot \frac{t}{T} ,$$

où N° est le nombre d'Avogadro,

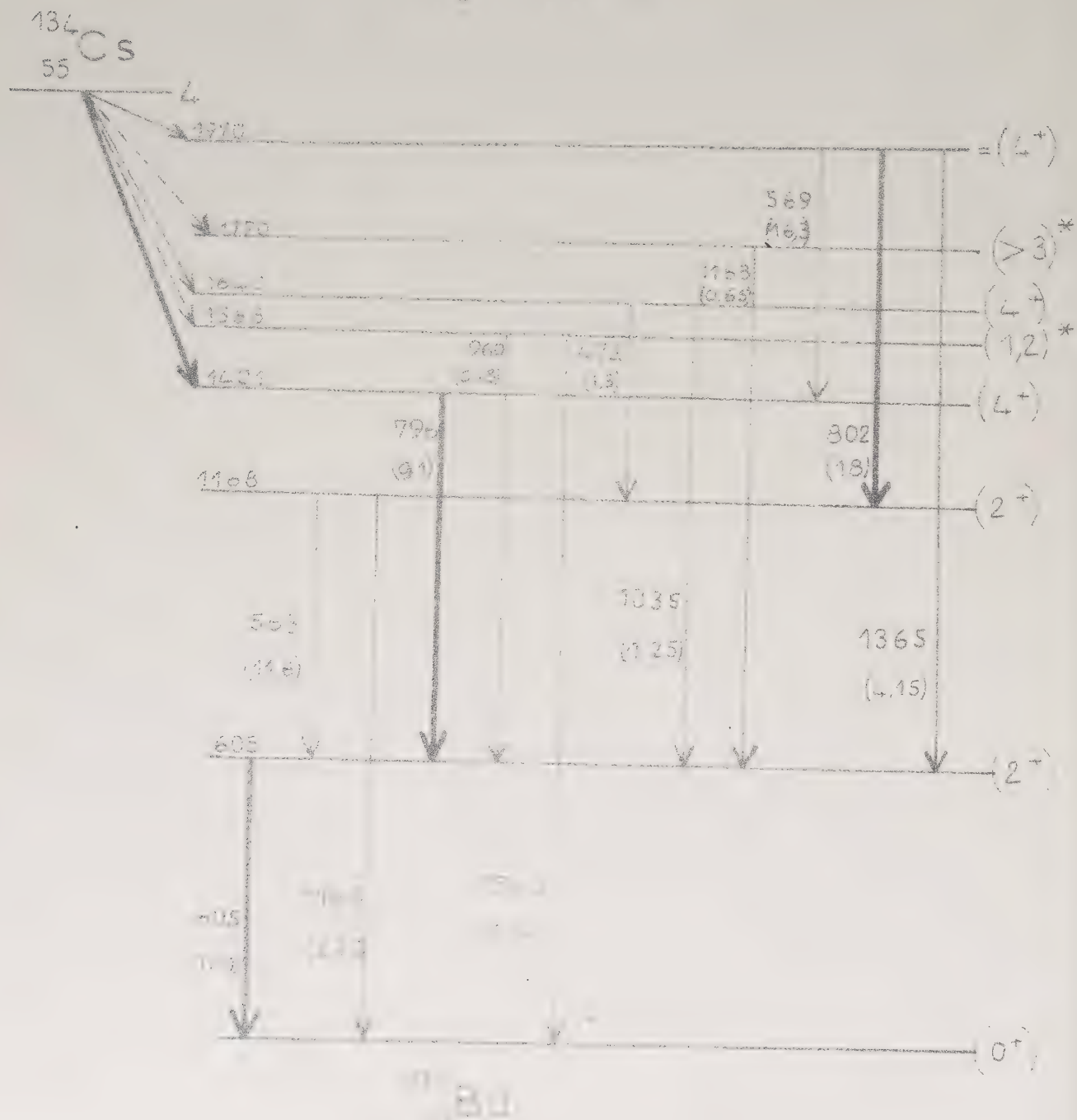
M la masse moléculaire du chromate de césium,

σ la section efficace de capture neutronique (33 barns pour le césium),

T la période du ^{134}Cs .

Les conditions d'activation (ϕ et t) suivant l'activité désirée sont donc ainsi déterminables; cependant le flux n'est pas connu avec une précision suffisante pour que l'on puisse se borner à l'application de cette relation. On préfère comparer l'activité d'une masse donnée de chromate à celle d'une source étalon de ^{134}Cs et on se contente de déterminer le taux de comptage, dans les conditions expérimentales, de cette masse; la précision de la pesée, avec une balance sensible au microgramme, est nettement suffisante, en raison des fluctuations du comptage.

fig IV-1



* niveaux contestés par certains auteurs.

L'irradiation aux neutrons peut rendre radioactifs les autres atomes contenus dans le chromate utilisé : l'oxygène donnera ^{19}O dont la période est très courte (24,4 s); en outre le noyau originel ^{18}O est présent avec une abondance de 0,2 %; le second radioélément obtenu est le ^{51}Cr provenant du ^{50}Cr de faible abondance naturelle (4,3 %); il se désintègre avec une période de 28 jours et émet un rayon monoénergétique de 300 KeV séparable aisément du rayonnement de 800 KeV dû au ^{134}Cs .

La quantité de césium intervenant dans la couche photosensible étant déduite de l'activité initiale du chromate, nous nous sommes demandé si un effet Szilard-Chalmers ne pourrait pas perturber nos mesures. Un atome, après avoir capté un neutron, peut perdre un excédent d'énergie par émission. Il subit un recul au cours duquel les liaisons avec les atomes voisins au sein de la molécule peuvent être rompues. Après avoir perdu l'énergie cinétique excédentaire par chocs avec les molécules avoisinantes, cet atome restera emprisonné à proximité des autres fragments de molécule formés au moment de l'arrachement. Il peut y avoir soit recombinaison pour redonner la molécule initiale, ou une molécule semblable (c'est le phénomène de rétention), soit recombinaison avec d'autres éléments donnant des molécules de nature chimique différente, soit obtention d'atomes ou d'ions libres.

Ainsi par effet Szilard-Chalmers sur le chrome, l'ion chromate pourra se transformer en CrO_3 , CrO_3^{2+} , CrO_4^{4+} , Cr^{6+} et Cr^{3+} et le césium correspondant pourrait ne pas être libéré lors de la réaction avec le silicium. Les résultats expérimentaux de Green, Harbottle et Maddock [IV, 3 et IV, 4] sur le chromate de potassium, en solution aqueuse, montrent que le taux de formation d'ion chromique est très faible et la rétention de l'ordre de 60 %.

De toutes façons on peut montrer que la proportion d'atomes de césium radioactifs reste inchangée, quelle que soit l'importance de cet effet Szilard.

Désignons par P_1 et P_2 les probabilités pour qu'un atome de chrome ou de césium devienne radioactif dans l'irradiation considérée. Soit f la fraction d'atomes de chrome subissant l'effet Szilard sans rétention. Pour N molécules de chromate de césium soumises à l'irradiation, l'activité spécifique du césium sera
$$\frac{2 N P_2 - 2 N P_1 f \cdot P_2}{2 N - 2 N P_1 f}$$
 pour les

molécules restées sous la forme de chromate et
$$\frac{2 N P_1 f P_2}{2 N P_1 f}$$

pour les molécules ayant subi l'effet Szilard sans rétention.

L'activité sera P_2 c'est-à-dire égale à l'activité spécifique en césium du produit irradié. Un raisonnement analogue pourrait s'appliquer aux atomes d'oxygène.

Ces considérations ne sont pas valables pour un effet Szilard-Chalmers sur le césium; cependant en raison de la forme cristalline la rétention doit être prédominante (communication privée du Professeur Haïssinsky) et nos mesures seront faiblement perturbées par ce phénomène. Une vérification expérimentale basée sur la méthode de double activation est en cours.

II - RAPPELS THEORIQUES

1) Détection du rayonnement gamma

Le détecteur utilisé est un cristal d'iodure de sodium activé au thallium. Si un photon d'énergie E inférieure à 1 MeV est absorbé par le cristal, il donnera naissance à un photoélectron d'énergie $T \neq E$, ou à un électron Compton. Dans ce dernier cas, l' γ Compton crée soit avec la direc-

tion du rayonnement incident un angle θ (fig. IV, 2); son énergie est donnée par la relation $E_c = \frac{E}{1 + \frac{E}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)}$

(m_0 étant la masse au repos de l'électron).

L'électron Compton aura pour énergie

$$T = E - E_c = \frac{E}{1 + \frac{E}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)}.$$

Ces électrons (photoélectrons ou électrons Compton) perdent leur énergie dans le cristal en donnant naissance à des phénomènes de scintillation. Cette émission de photons lumineux, recueillie par un photomultiplicateur, est transformée en impulsion de tension dont l'amplitude est proportionnelle à T. Après amplification, ces impulsions sont analysées par un sélecteur d'amplitude. Le spectre du rayonnement gamma détecté s'obtient en portant le nombre d'impulsions par unité de temps en fonction de la hauteur de ces impulsions. Pour un rayonnement monoénergétique, le spectre théorique est celui de la figure IV, 3 où la raie photoélectrique correspond à toutes les combinaisons aboutissant à une absorption totale de l'énergie E du rayonnement incident. Quant au spectre Compton, il est continu entre les énergies 0 et $T_m = \frac{E}{1 + \frac{m_0 c^2}{2E}}$ correspondant à l'émission à

$\theta = 180^\circ$ du photon diffusé.

La scintillation d'un cristal, l'émission photoélectrique de la photocathode et l'émission d'électrons secondaires par les dynodes sont des phénomènes aléatoires introduisant des fluctuations autour de la valeur moyenne et entraînant un élargissement des raies photoélectriques. Lorsqu'aucun autre phénomène n'intervient, la raie a une

fig IV 2

Effet Compton

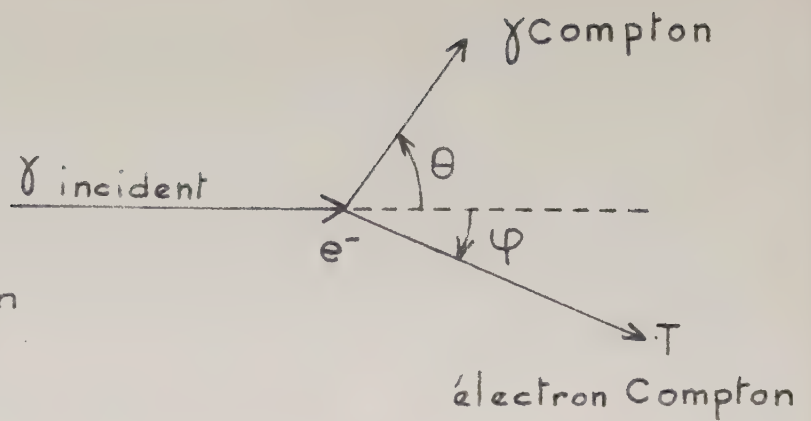


fig IV 3

Spectre théorique
 ^{137}Cs (par exemple)

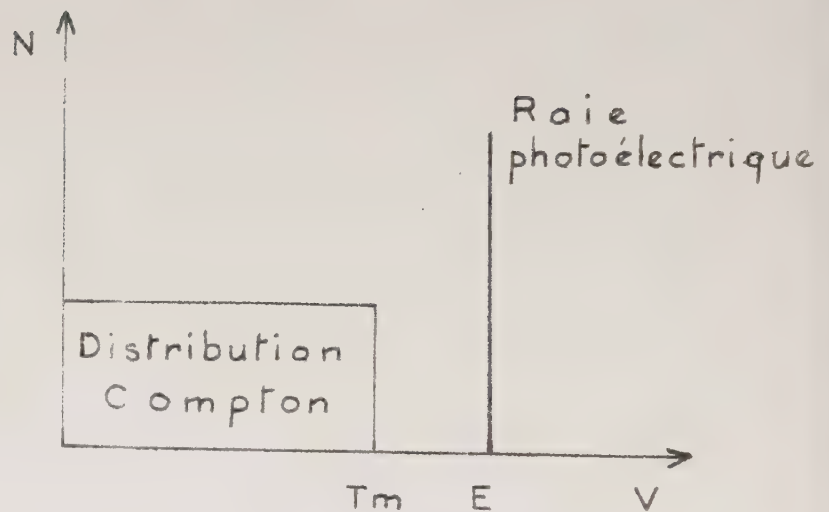
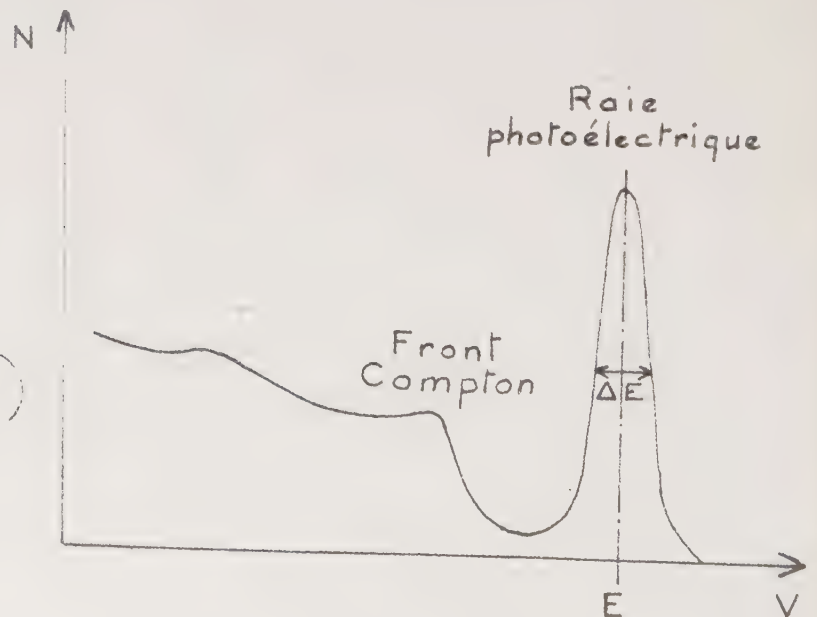


fig IV 4

Spectre réel (^{137}Cs)



distribution gaussienne; elle est alors caractérisée par sa largeur relative à mi-hauteur $\Delta E/E$ (fig. IV, 4).

Notons enfin que l'allure du spectre dépend de la distance de la source au cristal, de la dimension de la source et surtout de la dimension et de la forme du cristal. Les figures IV, 5 et IV, 6 représentent le spectre du ^{137}Cs détecté respectivement à l'aide d'un cristal d'iodure de sodium de 2" x 2" et d'un cristal de 6 mm de diamètre et 10 mm de hauteur, la source étant dans les deux cas ponctuelle et très éloignée du cristal.

2) Mode de comptage

Examinons d'abord le cas du ^{137}Cs . La présence de plomb au voisinage du détecteur élargit le pic photoélectrique du côté des basses énergies; il semble donc que l'on ait intérêt à ne compter que la moitié supérieure du pic (fig. IV, 7a). La moindre instabilité de l'appareillage électronique entraîne alors de grandes variations du taux de comptage. En effet, on constate expérimentalement que les variations sont très supérieures à la racine carrée de la moyenne des nombres comptés, valeur couramment admise. Le comptage devra donc être effectué sur toute la largeur de la raie photoélectrique (fig. IV, 7b) à partir d'une valeur correspondant à l'énergie E' située dans la "vallée" entre le pic photoélectrique et le front Compton, les fluctuations du discriminateur ayant alors une importance minimale.

Dans le cas du ^{134}Cs , il n'est pas possible d'utiliser le pic de 600 KeV : en effet, le front Compton correspondant au gamma de 800 KeV est situé au voisinage de 610 KeV; ce qui perturbe fortement la raie de 600 KeV. Les mesures sont possibles avec le pic de 800 KeV, le rayonnement gamma d'énergie supérieure à 1 MeV n'ayant qu'une faible intensité relative (fig. IV, 1 et IV, 8).

fig IV-5-

spectre ^{137}Cs -

cristal 2" x 2"

énergie MeV

2.

1.

0.9

0.8

0.7

0.6

0.5

0.4

0.3

0.2

0.1

0.09

0.08

0.07

0.06

0.05

0.04

0.03

0.02

0.01

0.009

0.008

0.007

0.006

0.005

0.004

0.003

0.002

0.001

0.0009

0.0008

0.0007

0.0006

0.0005

0.0004

0.0003

0.0002

0.0001

0.00009

0.00008

0.00007

0.00006

fig IV-6-

spectre ^{137}Cs

cristal 6mm.10mm.

énergie
MeV. 2.

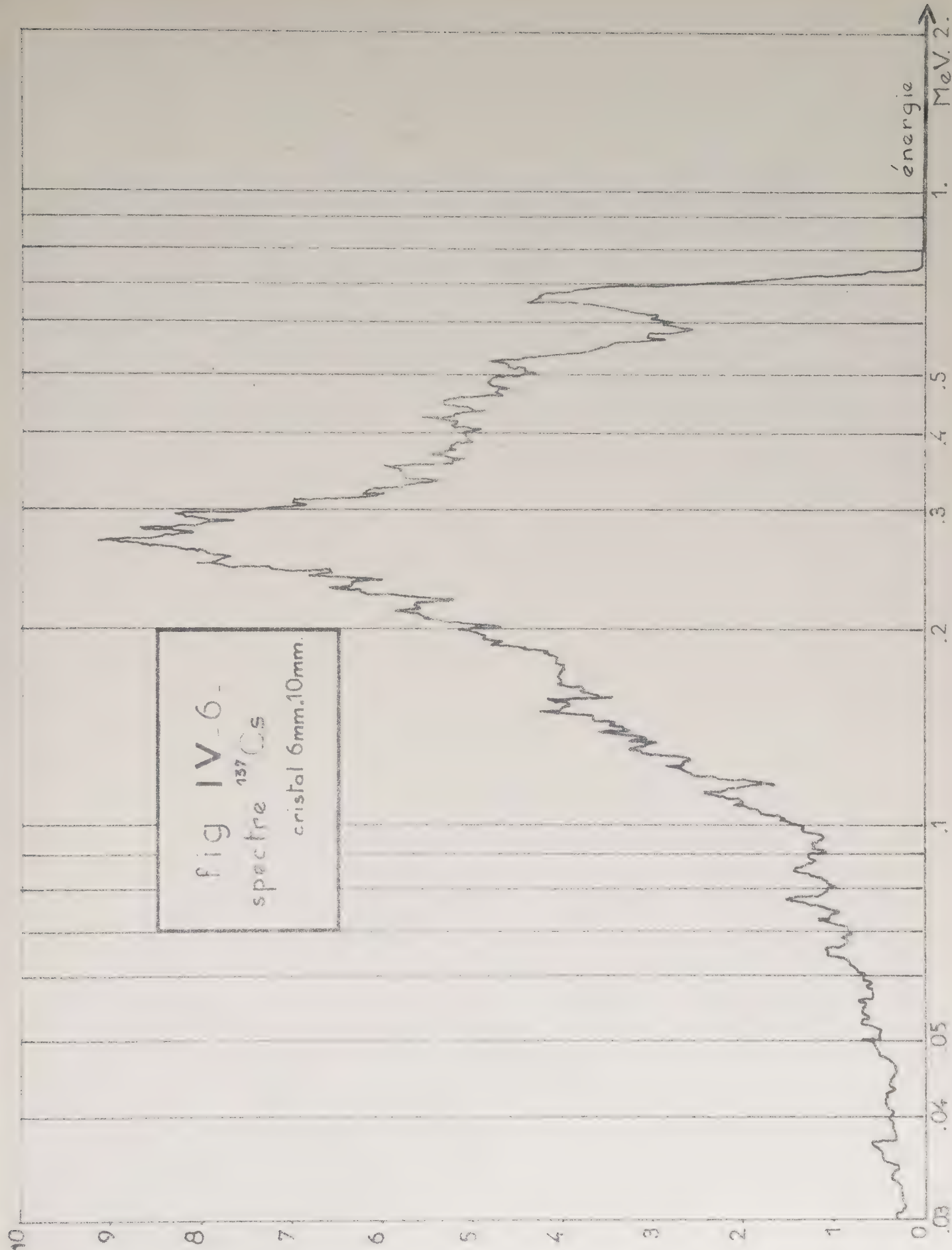


Fig IV 7c

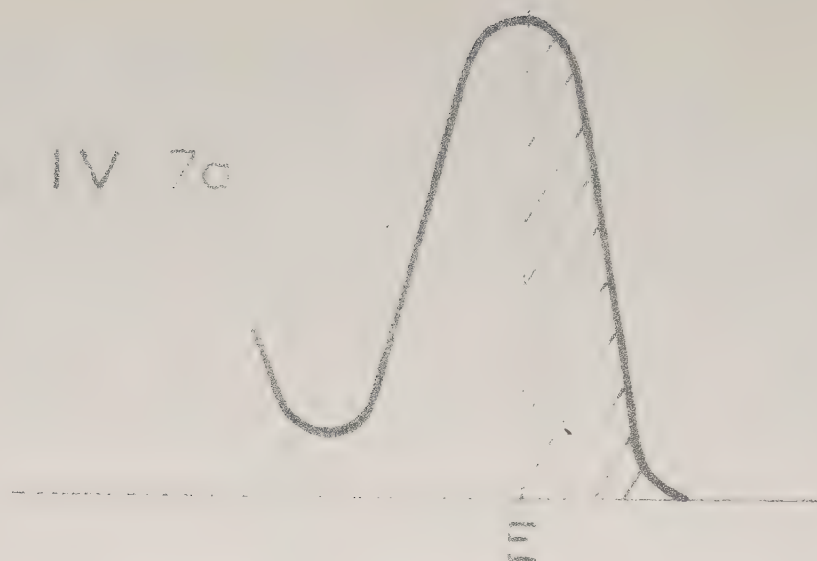


Fig IV 7c

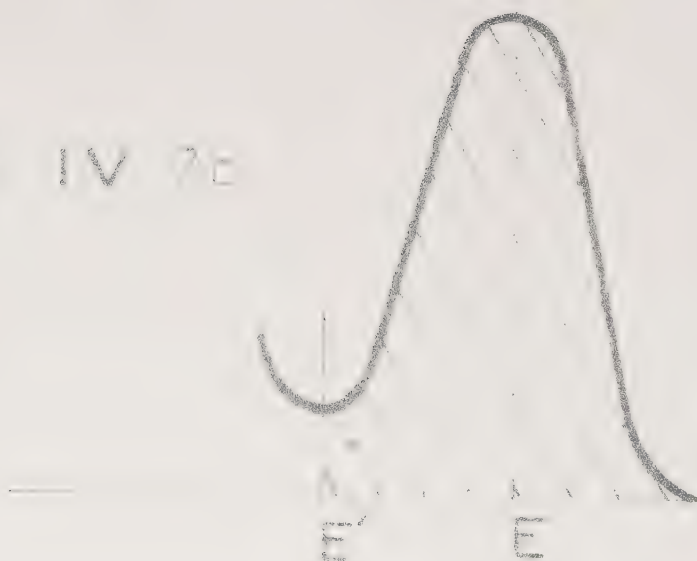
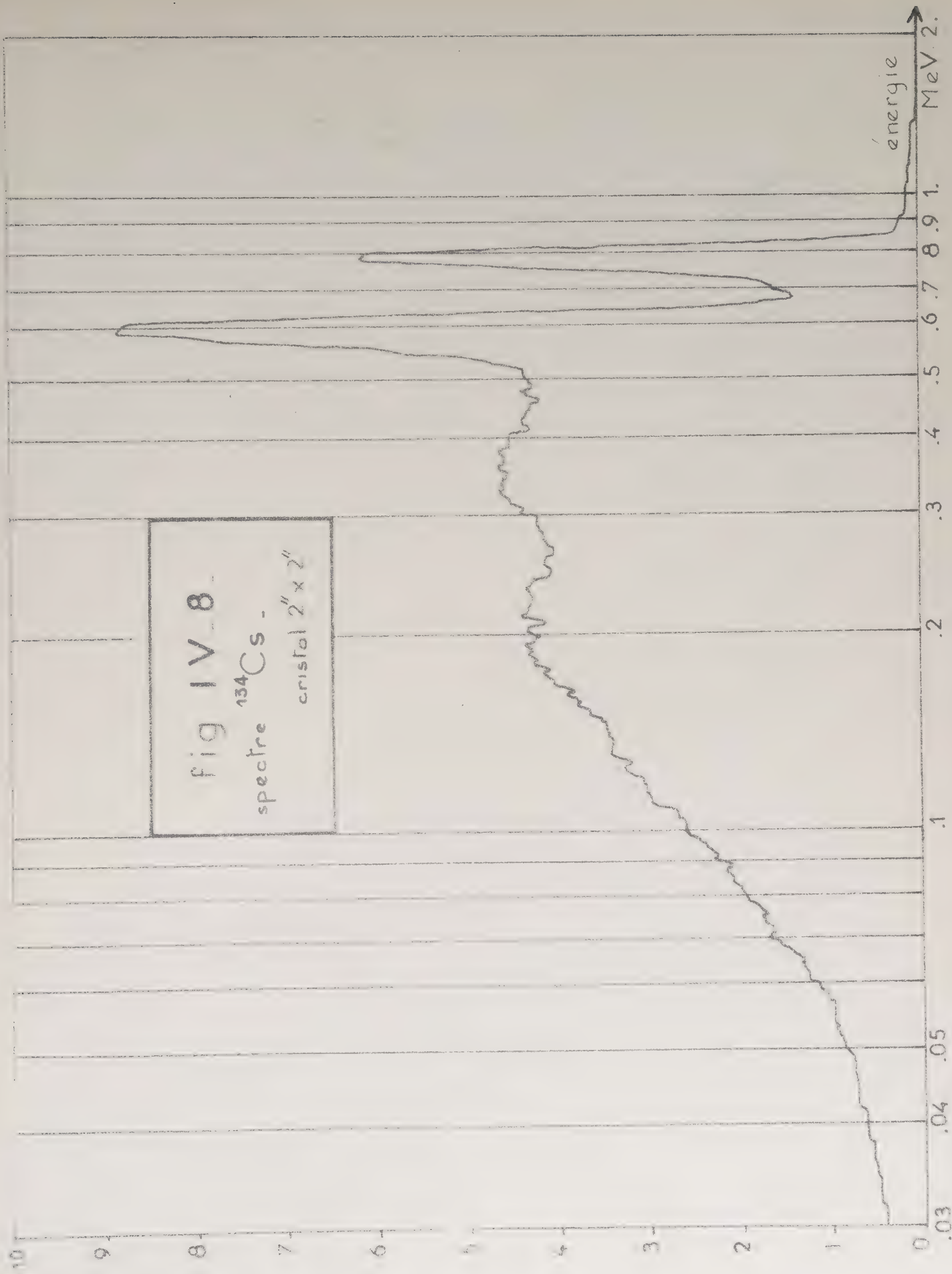


fig IV.8

spectre ^{134}Cs

cristal $2'' \times 2''$



3) Utilisation d'écrans ou de diaphragmes de plomb

Seul le césium déposé sur la photocathode nous inté-ressant, un diaphragme de plomb centré sur la photocathode sera placé entre la cellule à étudier et le détecteur. Les paramètres à déterminer sont : la distance entre le cristal détecteur et le plomb, le diamètre et l'épaisseur du diaphragme, les dimensions du cristal détecteur.

Pour qu'une source parasite située au voisinage de la photocathode ne soit pas comptée, une certaine épaisseur de plomb est nécessaire. Elle sera déterminée par application de la loi d'absorption : $I = I_0 e^{-\mu x}$, avec $\mu = 1,34 \text{ cm}^{-1}$ pour des gammas de 600 KeV et $\mu = 0,98 \text{ cm}^{-1}$ pour des gammas de 800 KeV. Dans le tableau II ont été relevées les épaisseurs x de plomb en centimètres permettant d'obtenir diverses valeurs de I/I_0 . Dans certains cas, nous avons été amené à utiliser une épaisseur de plomb de 10 cm, soit une atténuation voisine de $6 \cdot 10^{-5}$ pour des γ de 800 KeV. La plupart du temps, nous nous sommes contenté de 6 cm de plomb conduisant à une atténuation de $3 \cdot 10^{-3}$ pour 800 KeV. L'erreur ainsi commise était alors corrigée par une deuxième mesure effectuée à travers un écran de plomb de même épaisseur et de même homogénéité que le diaphragme.

Le second paramètre à déterminer est le diamètre ϕ de l'ouverture du diaphragme, dont la présence entre la source et le cristal modifie le spectre enregistré par ce dernier. En effet, un photon γ_c dû à un effet Compton vers l'avant dans le plomb, peut avoir une énergie E_c voisine de celle du photon γ incident d'énergie E , et atteindre le cristal avec une probabilité d'absorption plus ou moins importante suivant la région où a lieu l'interaction. On assiste alors à un élargissement de la raie photoélectrique du côté des faibles énergies.

Posons $\xi = \frac{E - E'}{E}$, E' désignant l'énergie à partir de

Tableau II

$E_{K\alpha V}$ \ I/I_0	10^{-2}	10^{-3}	10^{-4}
600	3,4	5,2	6,9
800	4,7	7,1	9,4

Epaisseur de plomb en centimètres pour diverses énergies E
et diverses atténuations I/I_0

laquelle on a choisi d'effectuer le comptage (fig. IV, 7 b). Cette valeur correspond à l'énergie E_c minimale que doit avoir un gamma-Compton donnant lieu à un effet photoélectrique dans le cristal. On aura, si θ désigne l'angle Compton correspondant :

$$\xi = \frac{E (1 - \cos \theta)}{E (1 - \cos \theta) + m_0 c^2},$$

d'où

$$\cos \theta = 1 - \frac{\xi m_0 c^2}{(1 - \xi) E}$$

La figure (IV, 9) donne θ en fonction de ξ pour les photons de 800 KeV. La valeur de ξ la plus faible que nous ayons pu réaliser expérimentalement est de 0,14 (fig. IV, 8). $\theta_{\max}$ sera supérieur à 28° . Le cristal détecteur, vu depuis une source ponctuelle sous un certain angle solide Ω en l'absence de plomb, le sera sous un angle solide supérieur en présence du diaphragme. Le schéma de la figure IV, 10 a été tracé à titre d'exemple avec un diaphragme ayant les dimensions du cristal, le plomb ne cachant pas la source ponctuelle S. L'interposition du diaphragme augmente donc le taux de comptage.

Pour une source ponctuelle située à une distance de l'axe de révolution du système supérieure au rayon du diaphragme, le phénomène est plus complexe. A cet effet Compton (fig. IV, 11) vient s'ajouter le fait que l'épaisseur de plomb traversée par le rayonnement n'est pas la même quand on remplace le diaphragme par un écran de même épaisseur et de même homogénéité (fig. IV, 12).

Si la répartition du césium dans le tube était déterminée, la probabilité pour un gamma d'être compté dans le pic photoélectrique serait obtenue par intégration. Cette répartition ne peut être connue que très grossièrement et

Fig IV-9.

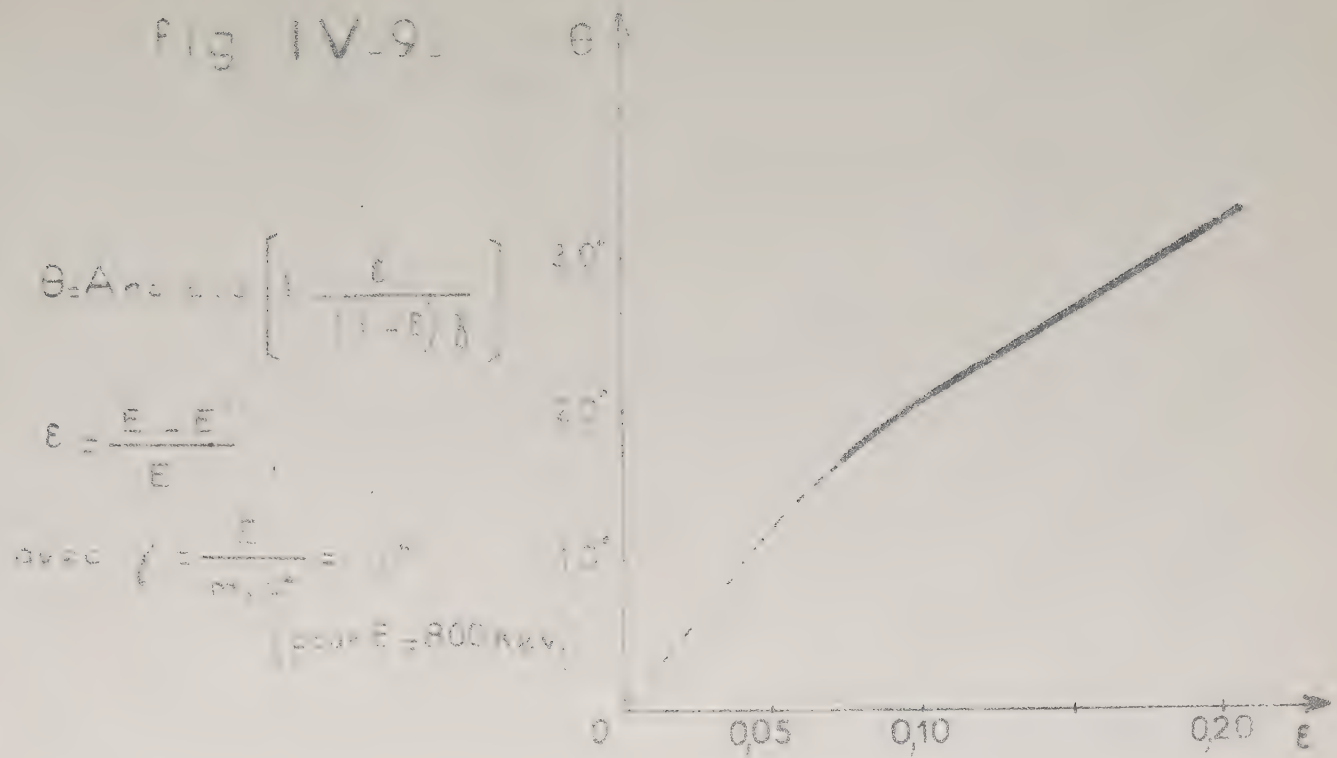


Fig IV-10.

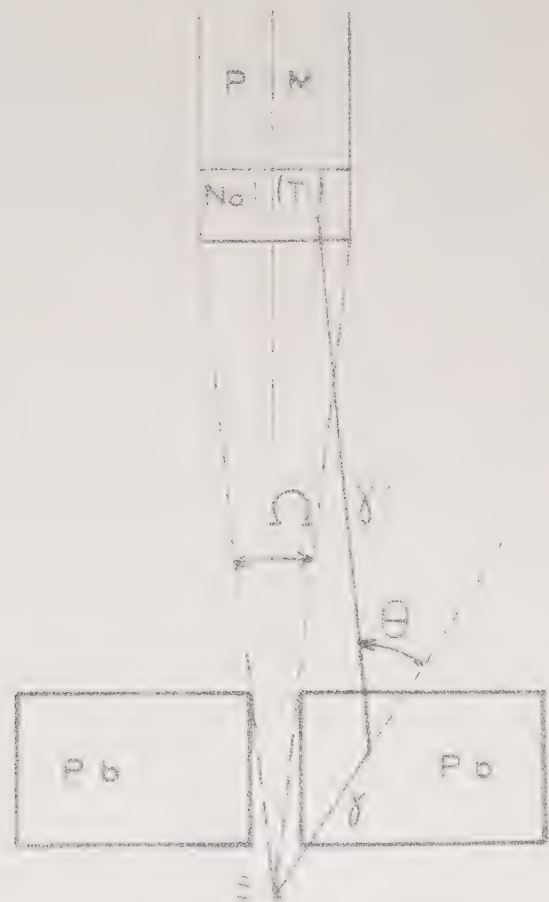


Fig IV. 11

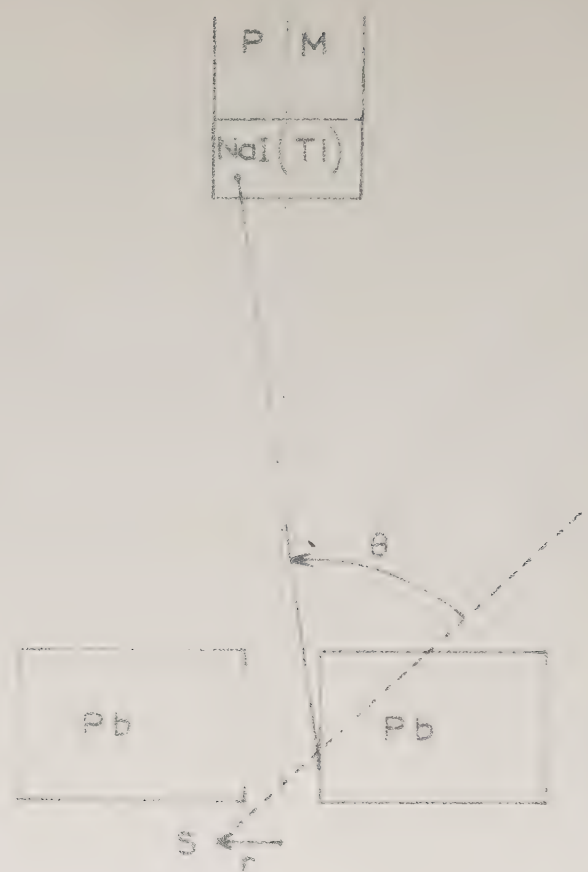
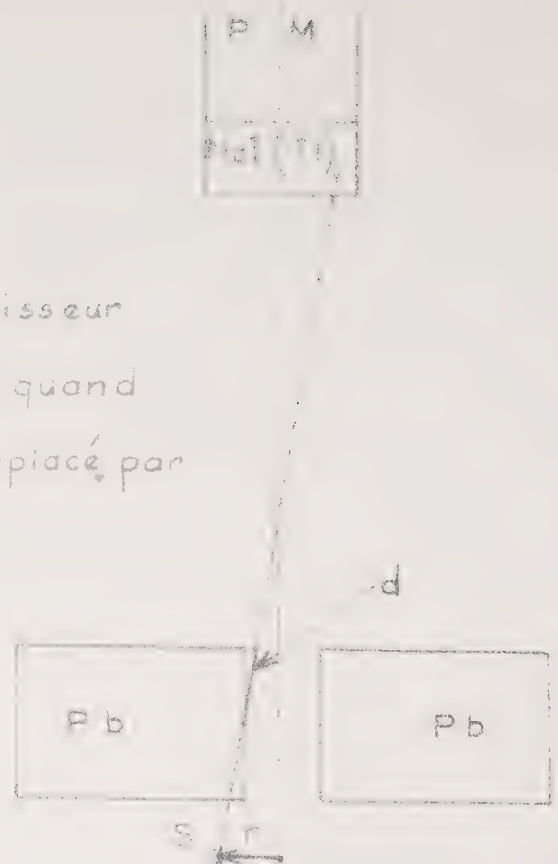


Fig IV. 12

d : différence d'épaisseur
de plomb traversée, quand
le diaphragme est remplacé par
un écran.



elle est variable d'un tube à l'autre. Tout au plus, on peut avoir une idée de l'importance du phénomène en intégrant les formules de Klein-Nischina. Le rapport $\frac{N}{N_0}$ des gammas-Compton vers l'avant, dont l'énergie est suffisante pour qu'ils soient comptés dans le pic photoélectrique, aux gammas-Compton, créés est alors donné par :

$$\frac{N}{N_0} = \frac{(1 - 2 \frac{\gamma + 1}{\gamma^2}) \log \frac{1}{1 - \xi} + \frac{1}{\gamma^2} \frac{\xi}{1 - \xi} + \xi \frac{2\gamma + 1}{\gamma^2} + \frac{\xi}{4} (2 - \xi)}{(1 - 2 \frac{\gamma + 1}{\gamma^2}) \log (1 + 2\gamma) + \frac{1}{2} + \frac{1}{\gamma} - \frac{1}{2(1 + 2\gamma)^2}},$$

où $\gamma = \frac{E}{m_0 c^2}$.

Avec $E = 800 \text{ KeV}$ (^{134}Cs) et pour $\xi = 0,14$ on obtient $N/N_0 \simeq 13 \%$. En outre, la proportion de l'effet Compton par rapport à l'ensemble des gammas absorbés par le plomb étant, pour cette énergie, de 68% , on aurait, au total, $9,1 \%$ des gammas absorbés au voisinage du diaphragme susceptibles d'être comptés, sous réserve qu'ils atteignent le cristal. Cette proportion, bien que n'ayant en soi aucune signification, montre que le phénomène ne peut être négligé.

En raison de la géométrie de nos tubes, la photocathode ne peut se trouver à moins de 1 cm environ du plomb; l'importance de l'angle θ_{max} impose pour le diaphragme une valeur très faible, et oblige à éloigner considérablement le détecteur, de sorte que le taux de comptage devient très faible par rapport au bruit de fond. Désignons par n_ϕ le taux de comptage correspondant à la partie utile de la photocathode, avec un diaphragme de diamètre ϕ , par n'_ϕ le taux de comptage pour l'environnement de la photocathode, constituant des sources parasites, et par n_0 et n'_0 les quantités correspondantes lorsque le diaphragme est remplacé par l'écran de plomb correspondant. Les considérations précé-

dentes montrent que l'on ne peut rendre n_0 , n'_0 , et $n'_\emptyset$ négligeables devant $n_\emptyset$, ce que l'on vérifie d'ailleurs expérimentalement. On mesurera donc pratiquement la concentration en césium sur la photocathode à partir de la différence $(n_\emptyset - n_0)$, la valeur optimale pour $\emptyset$ étant déterminée expérimentalement. En ne tenant compte que des fluctuations statistiques, les conditions à satisfaire seraient les suivantes :

$(n'_\emptyset - n'_0)$ doit être inférieur ou au plus égal aux fluctuations statistiques $(\sqrt{n'_\emptyset} + \sqrt{n'_0})$

et

$(n_\emptyset - n_0)$ doit être nettement supérieur aux fluctuations statistiques $(\sqrt{n_\emptyset} + \sqrt{n_0})$.

III - TECHNIQUE DE MESURE

Plusieurs techniques de mesure ont été envisagées et expérimentées; nous les exposerons en indiquant pour chacune leur commodité d'utilisation, la précision espérée et celle qui a été obtenue.

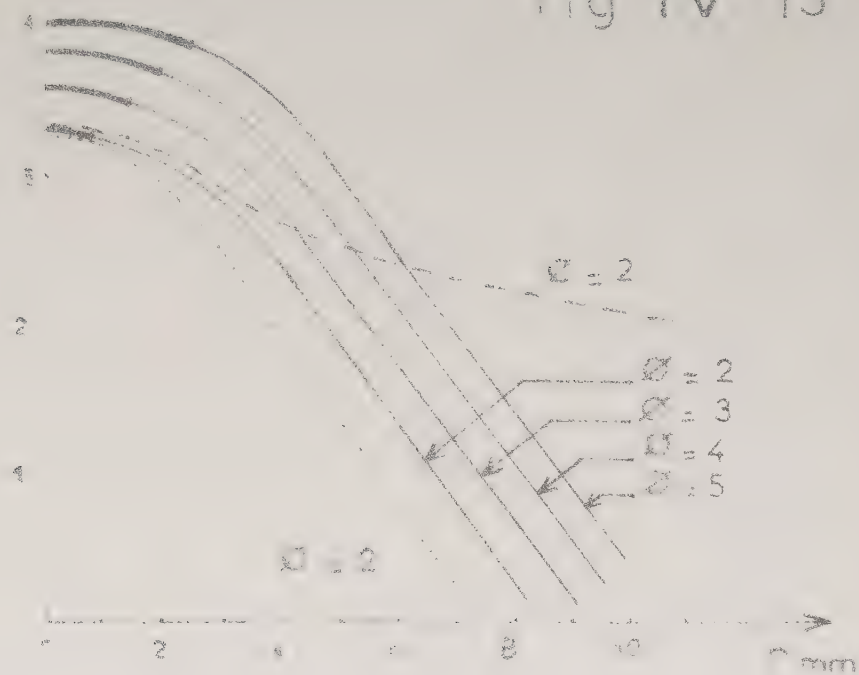
1) Emploi d'une source étalon ponctuelle

Une source pratiquement ponctuelle (1 mm^2 environ) et ayant une activité C de $86,5 \text{ } \mu\text{Ci}$ est placée perpendiculairement à l'axe du diaphragme à une distance du plomb égale à celle qui sera utilisée pour la photocathode (1 cm). Pour chaque distance r de la source à l'axe, on compte un nombre de coups $(N_\emptyset - N_0)_r$ par unité de temps. La figure IV, 13 représente les courbes obtenues avec un cristal de 51 mm de diamètre et de 51 mm de hauteur, placé à 35 cm du plomb, pour des trous de diamètres $\emptyset$ égaux à 2, 3, 4 et 5 mm, percés dans une plaque de plomb de 5 cm d'épaisseur.

Lorsque la distance entre l'axe du diaphragme et la source ponctuelle est supérieure au rayon du diaphragme, le

$$\log(N_0 - N_0') \sim A$$

fig IV 13



crystal de CaF_2 - $\sigma = 2$ - $n = 2'$

crystal de CaF_2 - $\sigma = 3$ - $n = 3'$

crystal de CaF_2 - $\sigma = 4$ - $n = 4'$

crystal de CaF_2 - $\sigma = 5$ - $n = 5'$

taux de comptage n'est pas négligeable. Il est dû à l'effet Compton dans le plomb, et sera d'autant plus important que le détecteur en sera plus proche. La courbe en tirets de la figure est relative au cas où le cristal de NaI (Tl) est placé au contact de l'écran de plomb. L'effet Compton est moins marqué pour le ^{137}Cs (courbe pointillée de la figure IV, 13) qui a un photon gamma moins énergétique.

L'activité spécifique x (en microcuries par millimètre carré) d'une source étendue, homogène, caractérisée par les nombres n_ϕ et n_0 sera donnée par la relation :

$$x = \frac{n_\phi - n_0}{2\pi \int_0^\infty (N_\phi - N_0)_r r dr} C \quad (4)$$

La courbe $Y = (N_\phi - N_0)_r \cdot r$ est représentée avec la figure IV, 14. L'aire sous la courbe représente l'intégrale $\int_0^\infty (N_\phi - N_0)_r r dr$. Elle peut être décomposée en deux termes :

$$\int_0^{8\text{mm}} (N_\phi - N_0) r dr + \int_{8\text{mm}}^\infty (N_\phi - N_0) r dr$$

Le diamètre du diaphragme sera choisi de façon à rendre négligeable le deuxième terme. Le premier sera déterminé graphiquement.

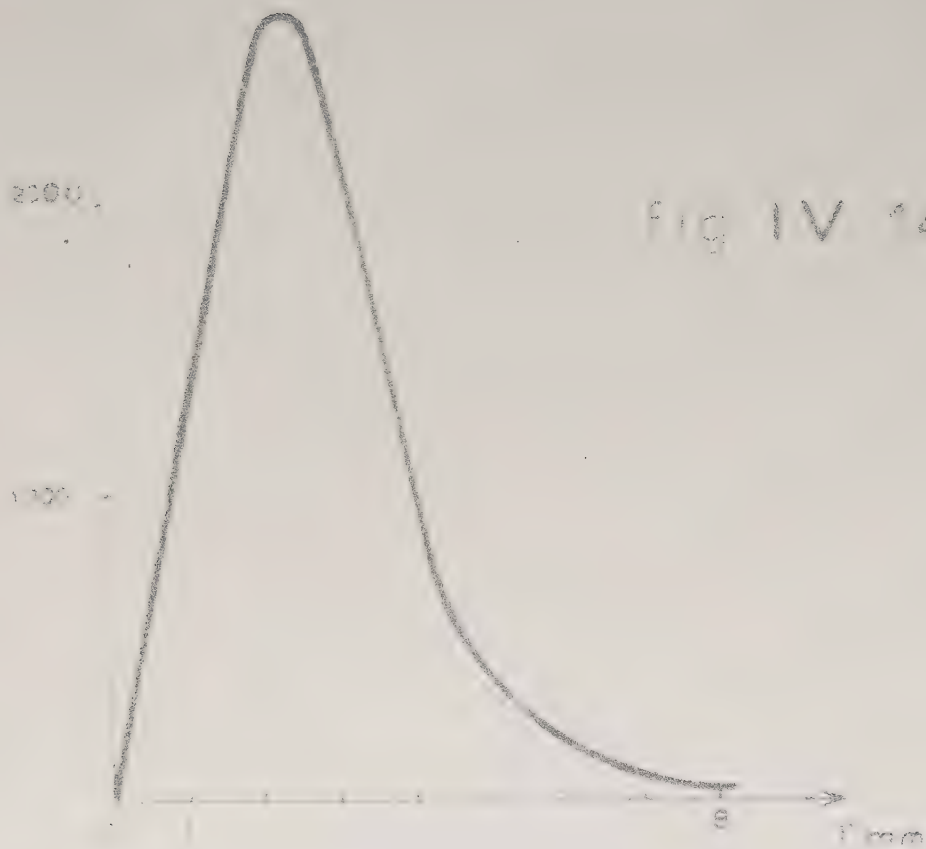
2) Emploi de sources étalons étendues à géométrie cylindrique

- Technique expérimentale

La méthode précédente nécessite la détermination de la valeur de l'intégrale chaque fois que l'on modifie l'un des facteurs du comptage (par exemple la distance photocathode-plomb). Pour obtenir un étalonnage plus rapide, nous avons préparé, par évaporation de solutions, trois sources radioactives étendues aussi homogènes que possible :

- une "source centrale" circulaire de 16 mm de diamètre, re-

$$(N_0 - N_{\infty})_A$$



cristal de NaI (Tl) de $2'' \times 2''$,
 placé à 35 cm d'une plaque de plomb
 de 6 cm d'épaisseur, $\varnothing = 2$ mm
 radioélément ^{134}Cs .

l'aire sous la courbe est égale à $\int_0^{\infty} (N_0 - N_{\infty})_A dt$

présente la photocathode; elle a une activité X_C de $24,4 \mu\text{Ci}$, ce qui, avec le chromate utilisé, est équivalent à une concentration Y_C égale à $17,5 \times 10^{15}$ atomes de césium par millimètre carré;

- une "première source annulaire" de $X_A = 47 \mu\text{Ci}$ est destinée à simuler l'influence des électrodes et des parois du tube; elle sera placée dans le même plan que la source centrale;

- une "deuxième source annulaire" de $14 \mu\text{Ci}$ environ, de mêmes dimensions que l'anneau évaporateur d'antimoine, permettra de tenir compte éventuellement de l'influence de ce dernier.

Avec un diaphragme de ϕ mm de diamètre, nous désignerons par N_ϕ le nombre d'impulsions comptées pour la source centrale pendant un intervalle de temps de 10 mn, déduction faite du bruit de fond, par N'_ϕ celui correspondant à la première source annulaire, par n_ϕ la valeur obtenue avec le tube expérimental. N_0 , N'_0 et n_0 désigneront les valeurs correspondantes dans le cas d'un écran de plomb. Dans l'expression de $n_\phi - n_0$ nous aurons à tenir compte de deux contributions, celle de la photocathode $(n_\phi - n_0)_0$ et celle de l'environnement $n'_\phi - n'_0$. Si Y est le nombre d'atomes de césium par millimètre carré pour la photocathode, on a

$$(5) \quad Y/Y_C = (n_\phi - n_0)_0 / (N_\phi - N_0),$$

soit, en première approximation,

$$(6) \quad Y = Y_C (n_\phi - n_0) / (N_\phi - N_0).$$

- Incertitude

L'incertitude relative comprend donc deux parties : l'une due à l'approximation précédente, l'autre provenant

des fluctuations statistiques :

$$(7) \quad \frac{\Delta_Y}{Y} = \frac{n'_\phi - n'_0}{n_\phi - n_0} + \frac{\Delta_{Y_c}}{Y_c} + \frac{\Delta(n_\phi - n_0)}{n_\phi - n_0} + \frac{\Delta(N_\phi - N_0)}{N_\phi - N_0}$$

Nous considérerons successivement ces différents termes. Le premier peut s'écrire :

$$(8) \quad I_1 = \frac{n'_\phi - n'_0}{n_\phi - n_0} \simeq \frac{X'/X_A}{X/X_c} \frac{N'_\phi - N'_0}{N_\phi - N_0},$$

X étant l'activité totale d'une surface de photocathode égale à celle de la source centrale et X' l'activité de l'environnement, que l'on suppose se comporter comme la source annulaire. Nous avons tracé (fig. IV, 15) la courbe donnant

$$\log \left(\frac{N'_\phi - N'_0}{N_\phi - N_0} \cdot \frac{X_c}{X_A} \right)$$

en fonction du diamètre ϕ du diaphragme : cette courbe subit une translation $\log (X'/X)$, caractéristique de chaque tube expérimental. Le rapport X'/X est estimé en déplaçant le tube derrière une fente de 1 cm de largeur pratiquée dans une brique de plomb de 15 cm d'épaisseur. La courbe pointillée $\log I_1$ (fig. IV, 15) concerne un tube pour lequel X'/X était voisin de 4.

Le second terme de la relation (7) peut aisément être rendu négligeable.

Les deux derniers termes correspondant aux fluctuations statistiques, nous choisirons comme incertitude la déviation moyenne, égale à la racine carrée du nombre compté. Pour tous les comptages la durée était de 10 mn. En désignant par N_b le nombre d'impulsions correspondant au bruit et par n''_ϕ , n''_0 , N''_ϕ et N''_0 les nombres mesurés, nous avons :

fig IV.15.

crystal de NaI(Tl) 2×2
 placé à 35 cm. d'une plaque de
 plomb de 6 cm d'épaisseur :

- $\log \frac{N_p - N_0}{N_p - N_0 X_p}$
 - - - $\log I_1$ incertitude due
 aux approximations
 - - - $\log I_2$ fluctuations statistiques

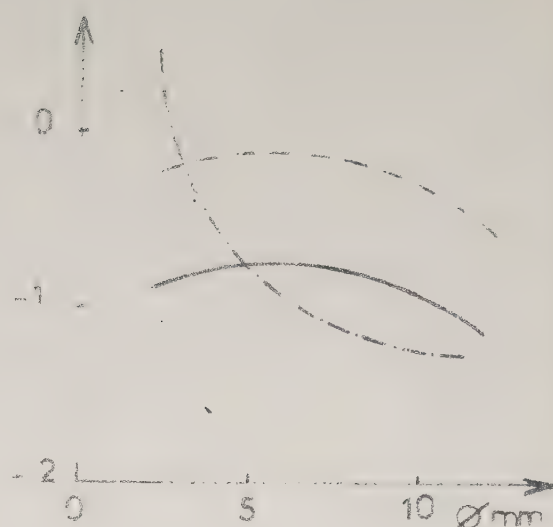
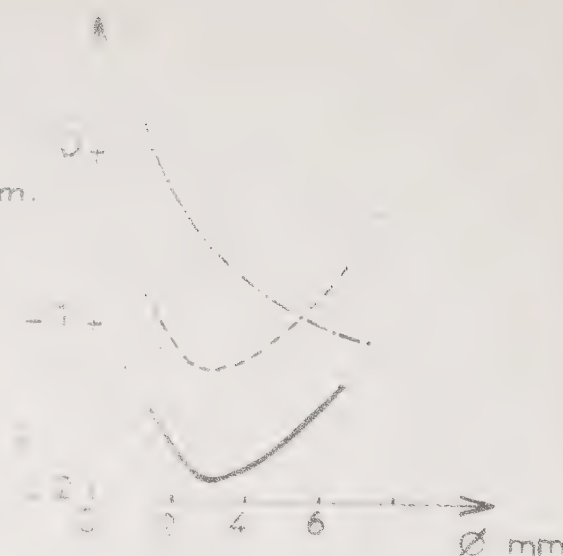


fig IV.16.

crystal de NaI(Tl) $\varnothing = 6$ mm, $h = 10$ mm.
 placé au contact d'une plaque de
 plomb de 6 cm d'épaisseur :

- $\log \frac{N_p - N_0}{N_p - N_0 X_p}$
 - - - $\log I_1$
 - - - $\log I_2$



$$\begin{aligned}
 n_{\phi} &= n_{\phi}'' - N_b, & n_0 &= n_0'' - N_b, \\
 N_{\phi} &= N_{\phi}'' - N_b, & N_0 &= N_0'' - N_b, \\
 (9) \quad \Delta(n_{\phi} - n_0) &= \sqrt{n_{\phi}''} + \sqrt{n_0''} + 2\sqrt{N_b}, \\
 \Delta(N_{\phi} - N_0) &= \sqrt{N_{\phi}''} + \sqrt{N_0''} + 2\sqrt{N_b}.
 \end{aligned}$$

En remplaçant n_{ϕ}'' et n_0'' par leurs valeurs approchées $(Y/Y_c)N_{\phi}''$ et $(Y/Y_c)N_0''$, l'incertitude relative due aux fluctuations s'écrit :

$$(10) \quad I_2 = \frac{\Delta(n_{\phi} - n_0)}{n_{\phi} - n_0} + \frac{\Delta(N_{\phi} - N_0)}{N_{\phi} - N_0} = \frac{(\sqrt{N_{\phi}''} + \sqrt{N_0''})(1 + \sqrt{Y_c/Y}) + 2 N_b [1 + \sqrt{Y_c/Y}]}{N_{\phi} - N_0}$$

Nous avons tracé en tirets, sur la figure IV, 15, la courbe donnant $\log I_2$ pour le tube expérimental correspondant à $Y_c/Y = 6,5$. On constate que l'incertitude I_1 due aux sources parasites est nettement prépondérante devant celle, I_2 , due aux fluctuations statistiques.

Afin de réduire l'incertitude I_1 nous avons diminué le volume du cristal détecteur; compte tenu des dimensions de nos photocathodes, nous avons choisi un cristal de 6 mm de diamètre et de 1 cm de hauteur. Avec un tel diamètre, l'erreur due aux sources parasites est considérablement réduite bien que le cristal soit mis au contact du diaphragme. Le taux de comptage de ce cristal est très inférieur à celui du cristal de 51 x 51 mm, mais le bruit étant beaucoup plus faible, l'incertitude reste sensiblement la même. Nous avons représenté sur la figure IV, 16 les courbes relatives au petit cristal. En tenant compte des deux erreurs, on constate que, pour le tube expérimental cité, l'incertitude est minimale au voisinage de $\phi = 6$ mm; nous avons adopté cette valeur. L'incertitude relative est alors de 22 % (11 % pour

le taux de comptage et 11 % pour les sources parasites). Nous n'indiquons pas ici les résultats obtenus avec la deuxième source annulaire en raison de la faible contribution, dans le cas cité, de l'anode de nickel.

- Justification de la méthode utilisée

Cette incertitude paraît prohibitive, cependant nos résultats expérimentaux montrent que cette méthode est valable; en effet, la quantité d'antimoine portée par la photocathode a été évaluée à $17 \times 10^{-4} \mu\text{g}/\text{mm}^2$, d'après certains de nos résultats antérieurs, soient $0,84 \times 10^{15}$ atomes/ mm^2 . Avec le cristal de 6 mm de diamètre on a obtenu pour le césium $2,7 \times 10^{15}$ atomes/ mm^2 . On a donc une composition très voisine de Cs_3Sb . La méthode de l'intégration graphique nous a donné les mêmes valeurs à 10 % près, tandis qu'avec le cristal de 51 x 51 mm les résultats obtenus sont nettement supérieurs, ce qui en exclut l'utilisation.

A la fin de notre étude, la quantité de césium sur la photocathode déterminée par cette technique a été trouvée égale à $3,0 \cdot 10^{15}$ atomes par mm^2 . Ce résultat a été vérifié en mesurant directement l'activité de la cathode après avoir cassé le tube. Au moment de l'entrée d'air le césium s'oxyde instantanément et se fixe définitivement; on constate en effet que le taux de comptage ne varie pas. On sépare alors la partie utile de la photocathode des électrodes d'acier et des contacts au platine. En éloignant suffisamment la photocathode du cristal de 51 x 51 mm on peut la considérer comme une source ponctuelle et faire une mesure précise. On trouve alors $2,8 \times 10^{15}$ atomes de césium par millimètre carré. Enfin, un nettoyage sommaire de la plaque de verre, du côté où n'était pas déposée la couche photosensible, a montré que la quantité de césium y était négligeable. Nous avons pu également vérifier que le rapport X'/X était voisin de 4, proche de la valeur estimée sur le

tube scellé par la méthode de la fente. En outre, l'activité totale de l'anneau de nickel servant d'anode étant 10 fois plus faible que celle de la photocathode, son influence est négligeable.

En augmentant la durée de comptage, on diminue la fluctuation statistique qui varie comme l'inverse de la racine carrée de ce temps : un comptage de 90 minutes donnerait une incertitude trois fois plus faible que pour la durée de 10 minutes adoptée, mais nécessiterait, compte tenu des diverses opérations, une durée d'expérimentation de 9 heures; dans ces conditions, la stabilité de l'appareillage électronique dont nous disposons n'était plus assurée.

En augmentant l'activité spécifique du césium utilisé, on diminue I_2 , mais le rapport X'/X , caractéristique de chaque tube, n'est pas modifié.

3) Méthode utilisant le déplacement de sources

Deux nouvelles sources étalons étendues ont été réalisées : une source carrée de $16 \times 16 \text{ mm}^2$ ayant une activité $X_1 = 136 \text{ } \mu\text{Ci}$ simulera la photocathode; une source rectangulaire de $5 \times 16 \text{ mm}^2$ et d'activité $X_2 = 28,7 \text{ } \mu\text{Ci}$ représentera l'une ou l'autre des deux électrodes en acier inoxydable servant à assurer le contact avec la couche mince et qui constitueraient les sources parasites principales. Nous avons utilisé le cristal de 6 mm de diamètre et un diaphragme de même diamètre percé dans une plaque de plomb de 6 cm d'épaisseur; soit x l'activité réelle de la photocathode, y et z celles des électrodes. Désignons par n le nombre d'impulsions comptées lorsque la photocathode est centrée sur l'axe du système, par n_y celui obtenu en centrant l'électrode d'activité y et par n_z celui relatif à l'autre électrode, N étant le nombre d'impulsions comptées lorsque la source étalon carrée est centrée, N' celui correspondant à une translation de la source de 10,5 mm (voir fig. IV, 17 et

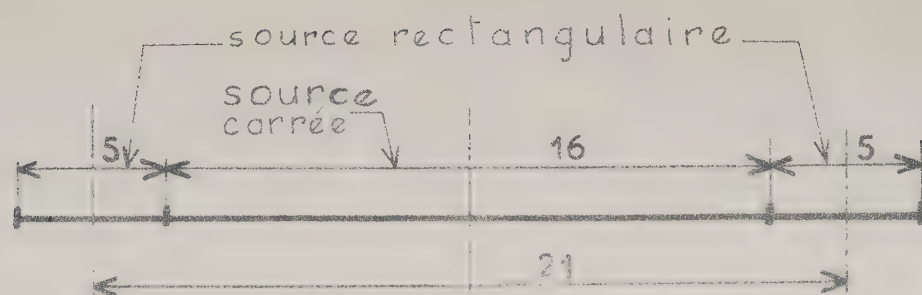


fig IV 17

source étalon carrée $16 \times 16 \text{ mm}^2$.

position centrée
taux de comptage N

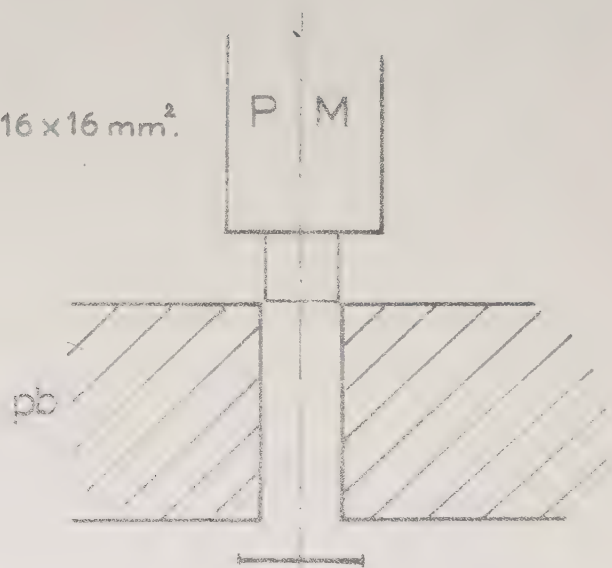


fig IV-18 a

source étalon carrée $16 \times 16 \text{ mm}^2$.

position décalée de 10,5 mm.
taux de comptage N'

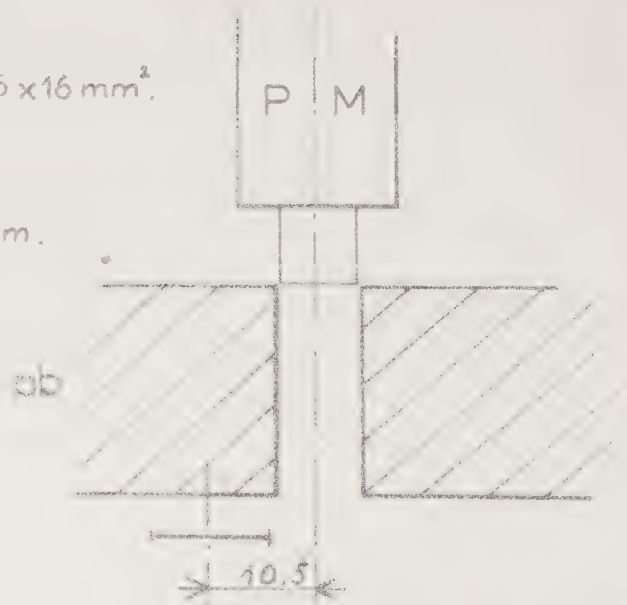


fig IV-18 b

IV, 18). Avec la source étalon rectangulaire on comptera N_1, N_2, N_3 pour les 3 positions schématisées sur la figure 19 a, b, c.

Nous désignerons par un indice 0 les nombres comptés dans chacune de ces positions lorsqu'un écran de plomb de même épaisseur sera substitué au diaphragme. Les activités inconnues seront déduites du système d'équations linéaires :

$$\frac{N - N_0}{X_1} x + \frac{N_1 - N_{10}}{X_2} (y + z) = n - n_0$$

$$\frac{N' - N'_0}{X_1} x + \frac{N_2 - N_{20}}{X_2} y + \frac{N_3 - N_{30}}{X_2} z = n_y - n_{y0}$$

$$\frac{N' - N'_0}{X_1} x + \frac{N_3 - N_{30}}{X_2} y + \frac{N_2 - N_{20}}{X_2} z = n_z - n_{z0}$$

Cette technique tenant compte de l'effet Compton dans le plomb, permet d'effectuer le comptage sur tout le spectre et non uniquement sur le pic photoélectrique de plus grande énergie, ce qui augmente considérablement le taux de comptage et rend possible l'utilisation de césium à très faible activité spécifique. Les résultats obtenus sont satisfaisants : on a trouvé, par exemple, avec un de nos tubes expérimentaux, 34,18 μCi en effectuant un comptage sur le pic de 800 KeV et 34,01 μCi pour tout le spectre à partir de 70 KeV, ce qui conduit à une densité de $0,96 \cdot 10^{15}$ atomes de césium par mm^2 ; la quantité d'antimoine déposée étant de $0,286 \cdot 10^{15}$ atomes/ mm^2 , on aurait donc ici 11,6 % d'atomes de césium en plus de la composition stœchiométrique. Il n'est malheureusement pas possible de déterminer la répartition de cet excès de césium à la surface ou dans la couche photoélectrique.

fig IV 19 a

taux de comptage N_1

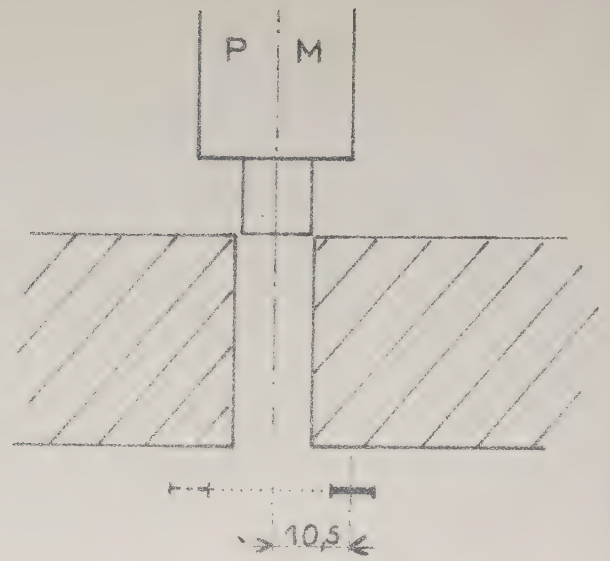


fig IV 19 b

taux de comptage N_2

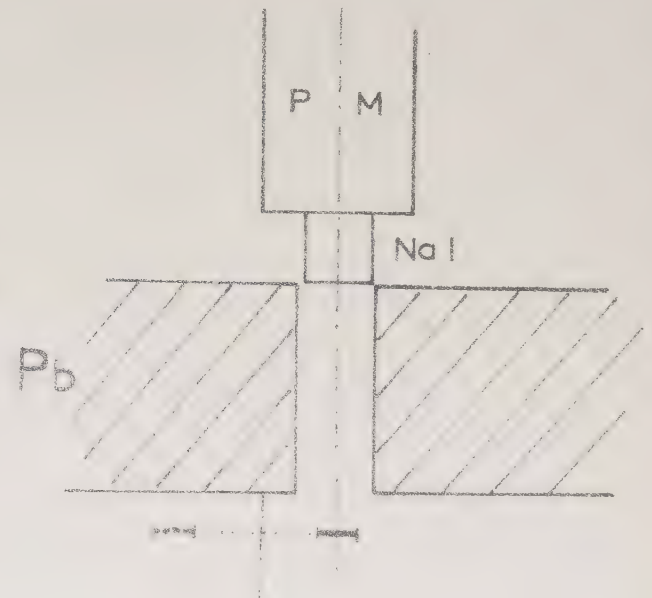
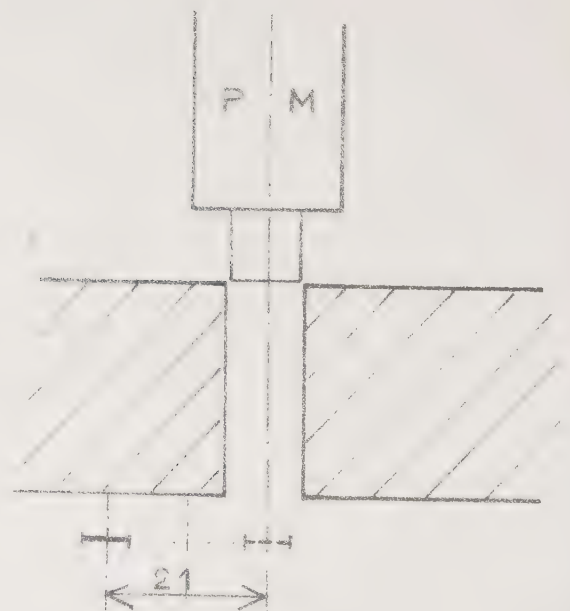


fig IV 19 c

taux de comptage N_3



4) Utilisation de deux détecteurs

Afin d'éviter le déplacement précédemment employé des sources radioactives, nous avons envisagé une autre méthode que nous exposerons très succinctement.

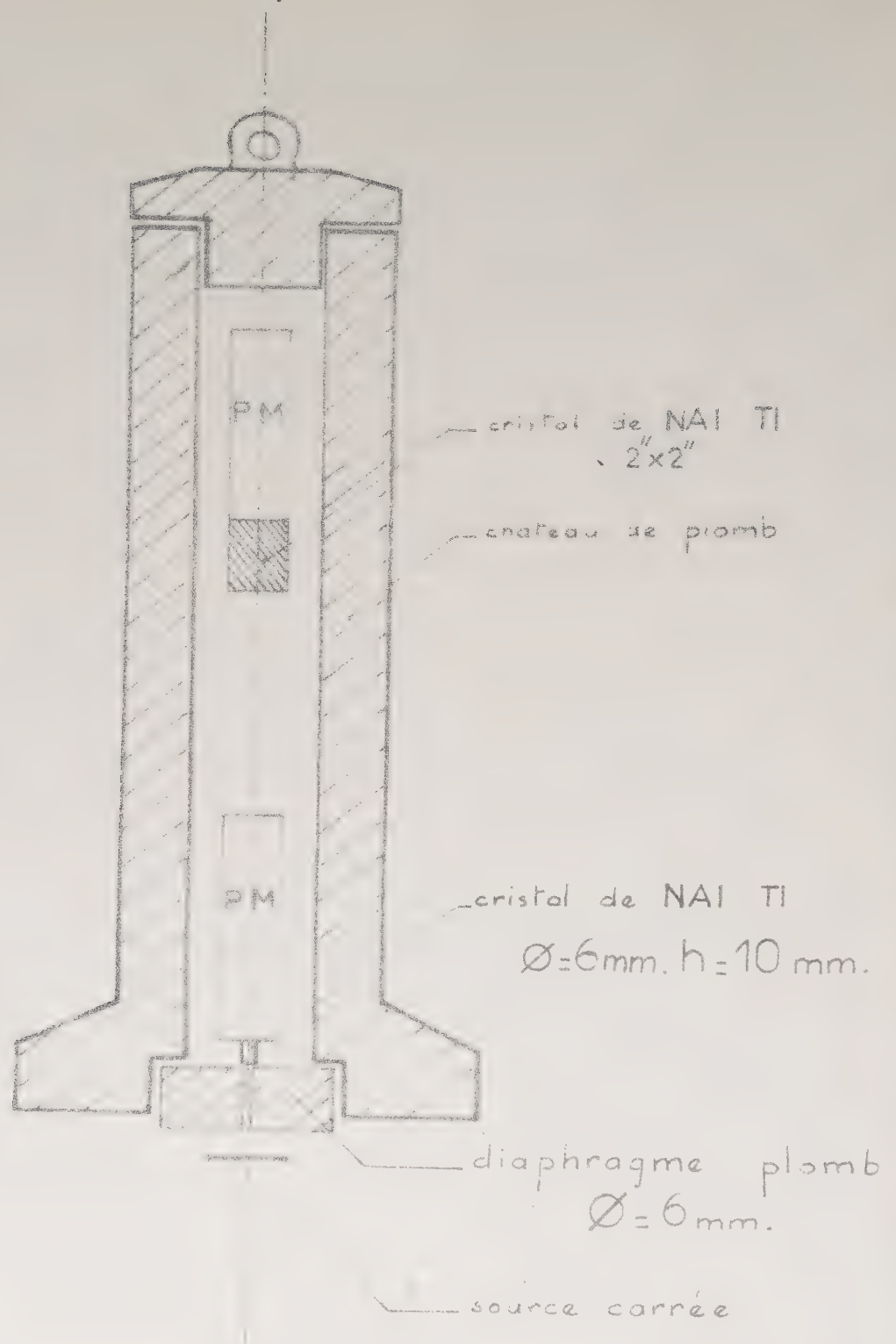
Deux sondes sont disposées dans le même château de plomb, l'une munie d'un cristal de 6 mm de diamètre est mise au contact du diaphragme, l'autre, munie du cristal de 2" x 2" sera placée à 40 cm au-dessus de celui-ci (fig. IV, 20). Les sources sont disposées de façon que l'axe du diaphragme passe par le centre de la photocathode ou de la source étalon carrée, alors que celui de la source étalon rectangulaire est décalé de 10,5 mm. Chaque source donne lieu à quatre comptages, deux par cristal, avec soit le diaphragme, soit l'écran de plomb de même épaisseur. Ces mesures peuvent être effectuées simultanément si l'on dispose de deux sélecteurs.

Un système de deux équations linéaires à deux inconnues est ainsi obtenu.

D'autres essais, actuellement en cours, permettront vraisemblablement d'améliorer la précision de ces mesures; par exemple, en plaçant différemment les sondes, on peut espérer arriver à compter essentiellement les γ Compton avec l'une d'entre elles.

IV - MESURE DES VARIATIONS DE LA QUANTITE DE CESIUM AU COURS DES TRAITEMENTS

Certains auteurs [IV, 1] ont indiqué que la lumière a un effet sensibilisateur pour les couches photoémissives; cet effet a été attribué en partie à une variation de la quantité de césium présente. Notre dispositif permet de vérifier expérimentalement cette hypothèse. Pour cela la couche émissive a été violemment éclairée (à l'aide d'une ampoule de 300 W) alors que l'une des extrémités du tube ex-



périmental était refroidie à l'azote liquide pour y condenser le césium éventuellement libéré. Les mesures effectuées nécessitant de nombreuses heures, nous avons dû utiliser un spectrographe multicanaux dont la dérive, soigneusement contrôlée, n'excède pas 1 ou 2 canaux sur 400 pour une durée de fonctionnement de 24 heures.

Ayant à suivre uniquement la variation de la quantité de césium, il n'était plus indiqué d'utiliser le petit cristal à faible taux de comptage; nous avons seulement vérifié expérimentalement, par la méthode de la fente, que le rapport X'/X des activités en césium des électrodes et de la photocathode était sensiblement le même avant et après traitement. Nous avons donc employé le cristal de 51 x 51 mm, placé à 35 cm d'un écran de plomb de 10 cm d'épaisseur dans lequel nous avons percé un trou de 3 mm de diamètre. Une autre sonde, munie d'un cristal de 25 x 25 mm, nous a permis de suivre les variations de la quantité de césium présente dans la zone refroidie du tube et de confirmer les résultats obtenus avec le cristal précédent.

Les opérations se déroulent de la façon suivante : le tube est éclairé par l'ampoule de 300 W pendant 10 mn, puis on effectue les mesures : celle de la quantité de césium déposée sur la photocathode, puis celle de la quantité de césium piégée par l'azote liquide. On modifie ensuite le processus en doublant la durée d'éclairage. Pendant les mesures de radioactivité nous avons procédé à des mesures de conductance de la couche photosensible et à des mesures de photoémission.

Nous donnerons ici les résultats relatifs au premier tube cité. Sur la figure IV, 21, est portée la réponse photoélectrique en fonction du nombre d'atomes de césium présents par mm^2 de cathode, et la figure IV, 22 indique l'évolution de la quantité de césium sur la photocathode en fonc-

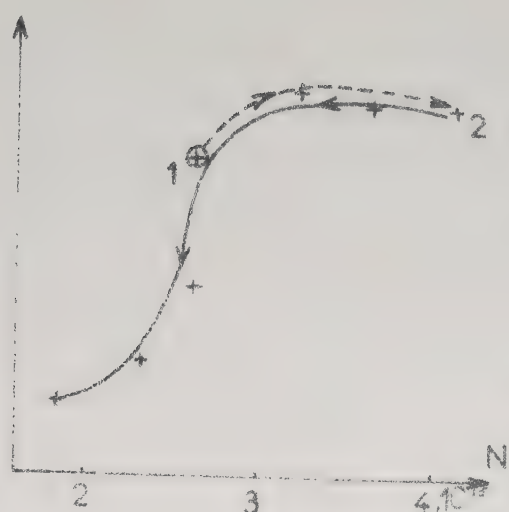


fig IV 21

en abscisse, nombre d'atomes de
césium / mm^2 ;

en ordonnée courant photoélectrique

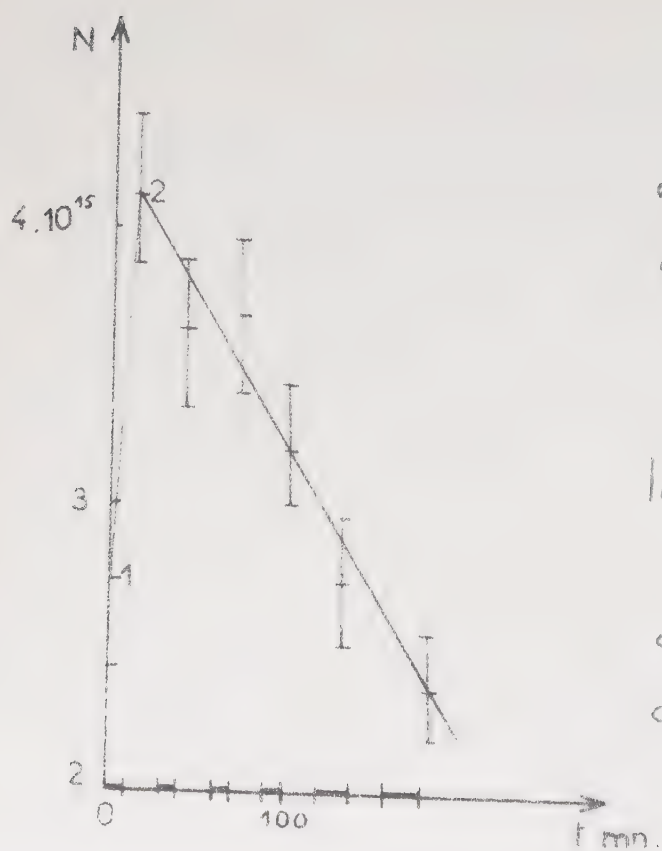


fig IV 22

en abscisse, temps en minutes ;

en ordonnée, nombre d'atomes de
césium mm^2

les segments en trait renforcé
sur l'axe des abscisses correspon-
dent aux périodes d'éclairement
de la cellule.

tion des traitements successifs subis. Il est à remarquer que le premier traitement a provoqué une augmentation importante de la quantité de césium sur la couche sensible, dépassant ainsi la proportion optimale pour la photoémission. L'état initial 1 et celui qui correspond au premier traitement 2 sont indiqués sur ces figures. Cette augmentation est vraisemblablement due à une condensation sur la cathode du césium provenant des parois du tube dont la température aurait évolué plus vite sous l'influence de l'éclairement. Les traitements ultérieurs ont fait constamment décroître la quantité de césium. Pour des traitements poussés la cathode subit une évolution irréversible; par exemple, bien qu'un stockage d'un mois environ ait provoqué un nouvel enrichissement en césium de la photocathode, l'émission photoélectrique est restée faible, voisine de celle qui correspondait au dernier traitement. De nouveaux traitements n'ont pu l'améliorer. En accord avec la figure IV, 21, on peut dire qu'il existe vraisemblablement deux domaines d'évolution de la proportion de césium, l'un étant réversible et l'autre irréversible; ces deux domaines correspondraient à une modification de la structure de la couche.

CONCLUSION

Malgré de très grandes difficultés expérimentales et une précision relativement faible, la technique d'utilisation des traceurs radioactifs est fructueuse : elle n'est pas destructive et permet de suivre l'évolution du césium quel que soit le traitement envisagé. Ajoutons que l'émission photoélectrique des couches ne semble pas affectée par l'émission radioactive : le courant d'obscurité est du même ordre que pour des tubes non radioactifs et nous n'avons

même pas pu mettre en évidence, après plusieurs mois de stockage, un vieillissement de la photocathode dû à la transformation du césium en baryum par émission β^- .

C O N C L U S I O N

Nous avons été conduit dans ce travail à mettre au point un dispositif de mesure de l'épaisseur des couches minces d'antimoine à partir de mesures de transparence optique. La masse d'antimoine déposée par unité de surface a été déterminée en utilisant la méthode du quartz piézoélectrique, après étalonnage par pesée. L'épaisseur réelle de ces couches a été mesurée grâce à l'observation au microscope optique de franges de Fizeau.

Les techniques expérimentales pour la fabrication des cellules et pour les différentes mesures ont été mises au point. Nous avons mis en évidence un déplacement vers le rouge du maximum de sensibilité spectrale pour des épaisseurs croissantes. L'émission en fonction de l'épaisseur pour différentes longueurs d'onde a montré que, pour les couches les plus épaisses réalisées, l'absorption des électrons serait plus importante que ne le laisserait prévoir une théorie sommaire. L'étude en fonction de la température nous a permis de déterminer l'énergie d'activation thermique de ce semi-conducteur. La valeur de 0,40 eV obtenue est en accord avec les résultats donnés par d'autres auteurs.

Après avoir montré qu'il était possible de déterminer la quantité de césium utilisée sur une photocathode grâce à la technique des traceurs radioactifs, nous avons étudié son évolution lors des différents traitements. Nous avons en particulier mis en évidence un domaine de transformations réversibles de l'état de la couche pour des éclaircissements modérés, alors que des traitements plus prolongés conduisent à un appauvrissement irréversible de la teneur en césium.

BIBLIOGRAPHIE

- I P. GORLICH,
Z. Physik, t. 101, 1936, p. 335
- I, 1 E. CREMER et E. RUELD,
apud : Ergebnisse der Hochvakuumtechnik und
der Physik dünner Schichten,
par M. AUWARTER, éd. Wissenschaftliche Ver-
lag, Stuttgart, 1957, p. 49.
- I, 2 G.A. CONDAS,
Rev. Sci. Instrum., t. 33, 1962, p. 987.
- I, 3 S. TOLANSKY,
Multiple-beam interferometry of surfaces and
films, éd. Clarendon Press, Oxford, 1948.
- I, 4 P. LOSTIS,
Rev. Opt., t. 38, 1959, p. 21.
- I, 5 G. SAUERBREY,
Zeits. Physik, t. 155, 1959, p. 215.
- I, 6 J.A. PRINS,
Nature, t. 136, 1935, p. 299.
- I, 7 H. RICHTER,
Physik. Zeits., t. 44, 1943, p. 406.
- I, 8 R. SUHRMANN et W. BERNDT,
Zeits. Physik, t. 115, 1940, p. 17.
- I, 9 L. HARRIS et L. SHAEFER,
Phys. Rev., t. 75, 1949, p. 943.
- I, 10 J. COHEN,
J. appl. Physics, t. 25, 1954, p. 798.
- I, 11 M. ROME,
J. appl. Physics, t. 26, 1955, p. 166.
- III, 1 H. MIYAZAWA,
J. Phys. Soc. Jap., t. 8, 1953, p. 169.
- III, 2 J. A. BURTON, *
Phys. Rev., t. 72, 1947, p. 231.

* De nombreux résultats obtenus par J.A. BURTON sont don-
nés par : V.K. ZWORYKIN et E.G. RAMBERG, dans : Photo-
electricity (John WILEY et Sons, Inc. New York, 1949).

- III, 3 N.D. MORGULIS, P.G. BORZYAK et B.I. DJATLOWIZKAJA,
Izvest. Akad. Nauk. S.S.S.R., Ser. Fiz.,
t. 12, 1948, p. 126.
- III, 4 G. WALLIS,
Ann. Physik, (6), 17, 1956, p. 401.
- III, 5 W.E. SPICER,
Phys. Rev., t. 112, 1958, p. 114.
- III, 6 P.G. BORZYAK,
J. Tech. Phys. (U.S.S.R.), t. 20, 1950, p. 923.
- III, 7 S. IMAMURA,
J. Phys. Soc. Japan,
t. 14, 1959, p. 1491,
t. 14, 1959, p. 1497.
- III, 8 E.A. TAFT et H.R. PHILIP,
Phys. Rev., t. 115, 1959, p. 1583.
- III, 9 T. SAKATA,
J. Phys. Soc. Japan,
t. 8, 1953, p. 125,
t. 9, 1954, p. 1030.
- III, 10 A. H. SOMMER,
J. Appl. Phys., t. 29, 1958, p. 1568.
- III, 11 J.B. BIRKS et I.H. MUNRO,
British J. Appl. Physics, t. 12, 1961,
p. 519.
- III, 12 K. MIYAKE,
J. appl. Phys., t. 31, 1960, p. 76.
- IV, 1 M. DUCHENE,
J. Phys., t. 26, 1965, p. 117.
- IV, 2 J.L. HUC et R. POUCHER,
J. Phys., t. 26, 1965, p. 390.
- IV, 3 J.H. GREEN, G. HARBOTTLE et A.G. MADDOCK,
Trans. Faraday Soc., t. 49, 1953, p. 1413.
- IV, 4 G. HARBOTTLE et A.G. MADDOCK,
J. chem. Physics, t. 21, 1953, p. 1686.

TABLE DES MATIERES

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES COUCHES MINCES

D'ANTIMONIURE DE CESIUM

INTRODUCTION	1
CHAPITRE PREMIER : ETUDE DES COUCHES MINCES D'ANTIMONINE	3
I - Appareillage d'évaporation et de mesure ..	5
1) Dispositif de pompage	5
2) Les évaporateurs	6
3) Disque de Talbot	7
4) Porte-échantillon	7
5) Détermination de l'épaisseur massique par quartz piézoélectrique	8
6) Appareillage optique	9
7) Sondes de mesures électriques	12
II - Résultats expérimentaux	12
1) Evaporation sous incidence normale	13
2) Evaporation sous incidence élevée	16
3) Phénomènes de cristallisation	17
III - Détermination des épaisseurs réelles ...	18
Conclusion	24
CHAPITRE II : TECHNIQUE DE FABRICATION ET DE MESURES ..	25
I - Tubes expérimentaux	27
1) Le support de la photocathode	27
2) Les évaporateurs	27

II - Dispositif de pompage	29
1) Pompes, pièges et sécurités	29
2) Montage sur pompes	32
III - Système de mesure des transparences	32
IV - Traitements sur pompes	34
1) Etuvage préalable	34
2) Formation de la couche d'antimoine	34
3) Formation de la photocathode	34
V - Source de lumière monochromatique	35
1) La lampe à ruban de tungstène	35
2) Le monochromateur	39
3) Correction énergétique	39
VI - Utilisation d'un flux lumineux continu ..	43
VII - Utilisation d'un flux lumineux variable	43
VIII - Enceinte cryogénique	46

CHAPITRE III : ETUDE DE LA PHOTOEMISSION

51

I - Les modèles électroniques	53
II - Le seuil photoélectrique	54
III - Effet de surface et effet de volume	57
1) Effet de volume	57
2) Effet de surface	59
IV - Photoconduction	59
V - Photoémission	61
1) Sensibilité spectrale	61
2) Variation de la photoémission avec l'épaisseur	65
VI - Répartition énergétique des photoélec- trons au voisinage du seuil	67
VII - Propriétés électriques	74

CHAPITRE IV : DOSAGE DU CESIUM	77
Introduction.....	79
I - Choix du radioélément	79
1) Utilisation du césium 137	79
2) Utilisation du césium 134	83
II - Rappels théoriques	86
1) Détection du rayonnement gamma	86
2) Mode de comptage	89
3) Utilisation d'écrans ou de diaphragmes de plomb	94
III - Technique de mesure	100
1) Emploi d'une source étalon ponctuelle	100
2) Emploi de sources étalons étendues à géométrie cylindrique	102
3) Méthode utilisant le déplacement de sources.....	109
4) Utilisation de deux détecteurs	113
IV - Mesure des variations de la quantité de césium au cours de traitements	113
Conclusion	117
CONCLUSION	119
BIBLIOGRAPHIE	121

